

(放医研)

○阿部道子, 阿部史朗, 幸 操

緒言 第25回放射化学討論会において、千葉における大気浮遊塵中⁷Be濃度の日毎の変動について、長期の測定成果を発表した。

世界の各国および日本の各地で測定されている大気中⁷Be濃度の月毎の変動については、大気の大規模な運動から、おおまかな説明がなされている。より短い時間の観測を行った時に見られる長期的、短期的な変動に対し、どのような因子が関与しているかを、気象要素などについて、概括的に考察した。

方法 大気中⁷Be日濃度変動に影響を及ぼすと考えられる主な気象要素すなわち気団、降水量、風などについて、大気中⁷Be日濃度との関係を調べた。気団については、9時の地上天気図を用い、12種の天気図型によって分類されたものを使用した。すなわち(1) H₁(西高東低型・冬型)、(2) H₂(移動性高気圧型)、(3) H₃(北高型)、(4) H₄(南高北低型・夏型)、(5) H₅(移動性高気圧の後面)、(6) L₁(日本海低気圧)、(7) L₂(本州付近の低気圧)、(8) L₃(本州南沖の低気圧)、(9) F₁(日本海を南下する前線)、(10) F₂(本州付近を通過中の前線)、(11) F₃(本州南沖に停滞する前線)、(12) T(本州の南沖の台風)である。降水量は日降水量(mm)、風については1日における平均的な風向および最大風速(m/sec.)の値を用いた。日降水量および風に関するデータは千葉測候所での観測値を使用した。対象期間は1980年11月より1981年10月までの1年間である。

結果および考察 結果の一部を示す。千葉における大気浮遊塵中⁷Be日濃度と気団および降水量との関係をFig. 1に示す。

大気浮遊塵中⁷Be日濃度と気団の関係を考察してみると、概括的には大気浮遊塵中⁷Be日濃度の高い日は、秋、春に多く、その多くはH₂型に大きく依存していることがわかる。これまで対流圏における大気中⁷Be濃度および核分裂生成物の濃度における春のピークは、多く注目され、冬から春にかけて成層圏から対流圏へ、ジェット気流により、圏界面を通過して、それらの移行が高められることで説明されている。しかし北半球の中緯度地帯に位置している日本では、特に⁷Beの場合においては、春とほぼ同濃度レベルの秋のピークを見出すことができる。Fig. 1に見られるように、春と秋のピークはH₂型に依存していることから、春のピークはジェット気流のみならずH₂型の気団の効果を考慮しなくてはならないだろう。他方大気中⁷Be日濃度の低い日は、季節的には冬、夏に多く、その大部分がH₁型、H₄型、L₁~L₃型、F型であることが示されている。

大気中⁷Be日濃度と降水量の関係をみてみると、大気浮遊塵中⁷Be濃度の場合は、降雨日、降雨後の効果さらに長い期間を考慮してみても、系統的な関係はみられないように思う。

この他にも、種々の因子について、考察してみた。

総括的には、大気浮遊塵中⁷Be濃度の日本付近における変動は、局地的な因子によるよりは大きな気象的なパターンによって支配されているものと云えそうである。

あべみちこ・あべしろう・ゆきみさお

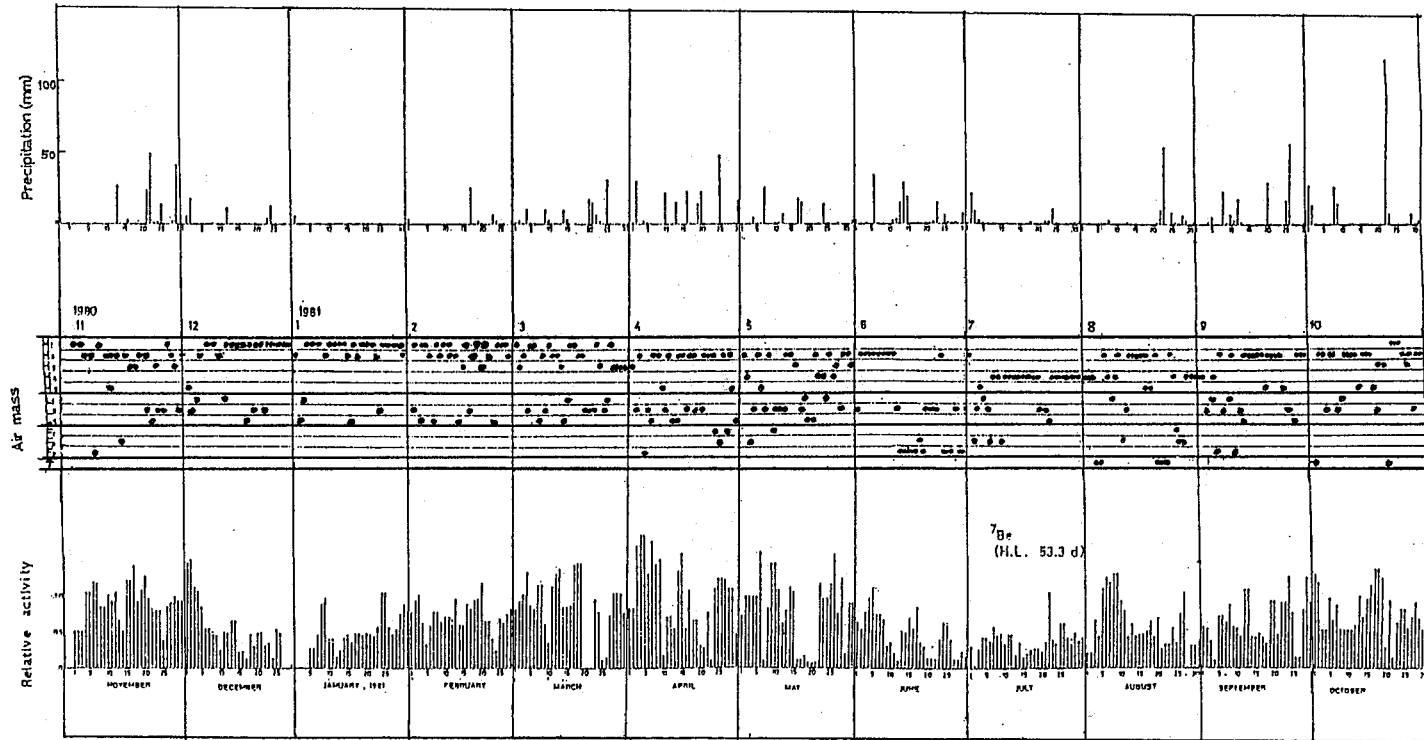


Fig. 1 Relationship among the daily concentration of ^7Be in airborne dusts at Chiba, air mass and precipitation.

(気象研究所) 杉村行勇・片瀬勝己

地表大気浮遊塵中のトリウムの濃度に関しては、従来、中性子放射化分析法により研究されているだけで、大気・降水中のトリウム同位体の濃度については、ほとんど報告例がない。このように、トリウム同位体の気圏での挙動は、ほとんど知られていないのが現状である。私たちは、気圏を通じての物質輸送の一環として、東京および筑波におけるトリウム同位体の降水量、および地表大気浮遊塵中のトリウム同位体濃度の研究を行ったので報告する。

降水試料は、面積 1m^2 の採水器を用い、1ヶ月分の全降水をまとめて採取した。一方、地上付近の大気浮遊塵は、ハイボリュームサンプラー(流量: 1000 l min^{-1})を用い、ガラスファイバー濾紙(GB-100R)上に捕捉した。降水と大気浮遊塵の試料の採取場所は、1980年3月までは、東京(高円寺)、1980年4月以後は、研究所の移転に伴い、筑波である。なお、大気浮遊塵試料については、1980年4月から5月にかけて、海上(30°N , 147°E)でも採取した。

トリウムの分析に用いた降水試料は、始めに加熱蒸発乾固させた。得られた残渣は、 6 mol l^{-1} 塩酸溶液に加熱溶解した。鉄共沈法により、トリウムを多くの主要元素から分離した後、沈殿は 8 mol l^{-1} 塩酸溶液に溶解させた。イソプロピルアルコールを用い、溶媒抽出法により鉄をとり除いた。水相を蒸発乾固後、 8 mol l^{-1} 硝酸溶液に溶解させ、陰イオン交換樹脂(Dowex 1x2)に、トリウムを吸着させた。 9 mol l^{-1} 塩酸溶液で、トリウムを溶離した

後、トリウム画分はエタノール- 2 mol l^{-1} 塩酸(20:1)溶液にとかし、銀板上に電着した。

大気浮遊塵中のトリウムの分析には、1ヶ月間の試料をまとめて用いた。(通気量で、約 10^4 m^3 に相当する。)大気浮遊塵試料は、 8 mol l^{-1} 硝酸溶液、および塩酸で分解した後、 8 mol l^{-1} 硝酸溶液に溶解し、陰イオン交換樹脂を

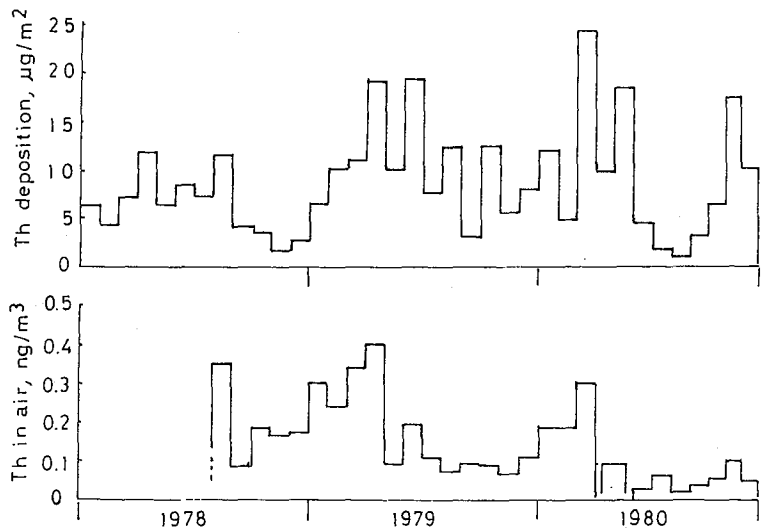


図1. 大気・降水中のトリウム濃度

すぎむらゆきお・ひろせかつみ

を通した。陰イオン交換樹脂に吸着したトリウムは、 9 mol l^{-1} 塩酸溶液で溶離した。トリウムの画分は、銀板上に覆着した後、 α -波高分析器で、各トリウム同位体の含量を定量した。

東京および納波における、大気、降水中のトリウム-232濃度の経時変化を図1に示す。東京におけるトリウム-232の年間降水量は、1978年に、 $76\text{ }\mu\text{g m}^{-2}\text{y}^{-1}$ 、1979年に、 $126\text{ }\mu\text{g m}^{-2}$ 、1980年に、 $115\text{ }\mu\text{g m}^{-2}\text{y}^{-1}$ (1980年は東京管区気象台採取試料を用いた。)であった。納波では、1980年の年間降水量が、 $51\text{ }\mu\text{g m}^{-2}\text{y}^{-1}$ で、東京の約半分であることがわかった。

降水中のトリウム-230とトリウム-232の放射能比は、年間の平均値として、 $0.9\sim 1.3$ であった。一方、降水中のトリウム-228とトリウム-232の放射能比の年間平均値は、 $2.5\sim 2.7$ で、トリウム-228が、かなり過剰になっていることがわかった。

大気中のトリウム-232の平均濃度は、1979年に、 0.14 ng m^{-3} 、1980年に、 0.09 ng m^{-3} 、1981年に、 0.11 ng m^{-3} であることがわかった。大気中のトリウム-230とトリウム-232の放射能比の年平均値は、 $1.1\sim 1.2$ であった。また、大気中のトリウム-228とトリウム-232の放射能比の年平均値は、 $2.5\sim 3.6$ で、降水と同様、トリウム-228が、かなり過剰になっていることがわかった。

大気中のトリウムと、降水中のトリウムとの関係を明らかにするため、トリウムの月間降水量と、大気中のトリウムの月間平均濃度をプロットしたところ、良い正の相関が成立することがわかった。

大気中でのトリウムの挙動を、更に明らかにするために、大気浮遊塵を、粒径別に分取し、各粒径に含まれるトリウム同位体濃度を求めた。大気浮遊塵の粒径は、 $18\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $18\sim 8\text{ }\mu\text{m}$ 、 $8\sim 3.8\text{ }\mu\text{m}$ 、 $3.8\sim 1.6\text{ }\mu\text{m}$ 、 $1.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下の5段階に分けた。1981年12月に採取した大気浮遊塵試料についての分析結果を図2に示す。このときの、大気中のトリウム-232濃度は、 89 pg m^{-3} であった。

大気中のトリウム-232は、粒径の大きな部分に主に存在し、図2に示されているように、全体のトリウム-232の44%が、粒径 $18\text{ }\mu\text{m}$ 以上の大粒子に存在した。

一方、トリウム-228とトリウム-232の放射能比は、粒径が $8\text{ }\mu\text{m}$ 以上の大粒子の場合、ほぼ1であるが、粒径が小さくなるに従って放射能比は大きくなり、 $1.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下の小粒子では、19という、高い値になった。

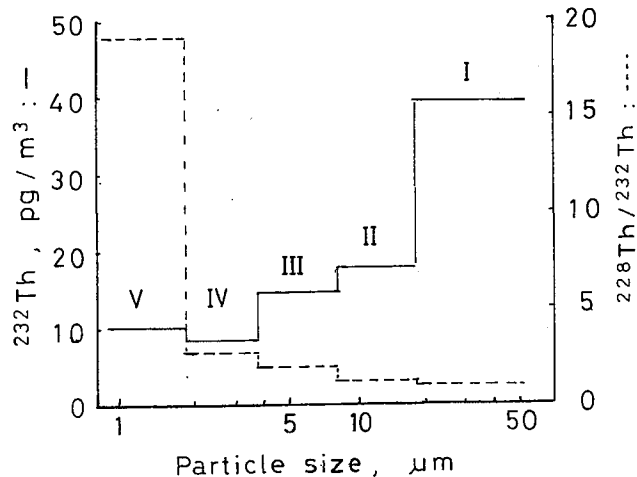


図2 大気中のトリウム同位体の粒径分布

(静岡大理) ○波多江 一郎・長谷川 昭彦・菅沼 英夫・吉岡 潤江・

山岡 聖典・大越 実・中村 恭子・宮崎 誠・前田 和夫

1. 緒言 地震発生に關するダイラタンシー・モデルによれば、地下変動に伴ない地下水のラドン含有量に変動が見られる。現在、東海地方とくに静岡県には大規模地震発生の可能性が大きいので、各方面からの調査・研究が行われている。このため、静岡県における地下水(主として深井戸)を対象としてラドン含有量を測定し、地震に対する有感井戸を見出してラドン含有量変動を常時観測することは地震予知に關して緊急かつ重要な意義をもつ。すでに二、三の機関により自幼観測が行われているが、データの解析に多くの困難が報告されている。われわれは可能な限り多くの観測地点でのデータにより、その一斉変動を捉えるための基礎検討を1980年末以来開始し、250地点のラドン含有量を測定して(IM泉効計による)、県内地下水の概略のラドン含有量分布を報告した(1981年度日本地球化学会年会)。その結果、全試料の平均ラドン含有量として $3.24 \times 10^{-10} \text{Ci/L}$ が得られ、全試料の60%が $(1-5) \times 10^{-10} \text{Ci/L}$ の範囲にあった。地域分布の特徴としては、西高東低の傾向(岳南(0.73), 西伊豆(2.05), 静岡(4.07), 中遠(5.72), 西遠(7.24) $\times 10^{-10} \text{Ci/L}$)が見られ、その原因としてラドンの究極的な供給源である基盤岩石の差(東部は塩基性岩石でラジウム含有量小、西部はほとんど堆積層)および風化生成物(土壌)の粒度の差(東部はほとんど溶岩そのもの、西部は泥層が発達)によるものと考えた。

そこで、静岡大学構内深井戸については1980年12月以降毎日1回の連続測定を、また県内約60箇所について少なくとも2~3ヶ月ごと(静岡地域11箇所については毎月)に試料採取を行ってラドン含有量変動のパターンを調べることにした。pH、電導度、溶存酸素量、水温などのほか、Cl、Br、I、FおよびNaなどの含有量も併せて測定した。

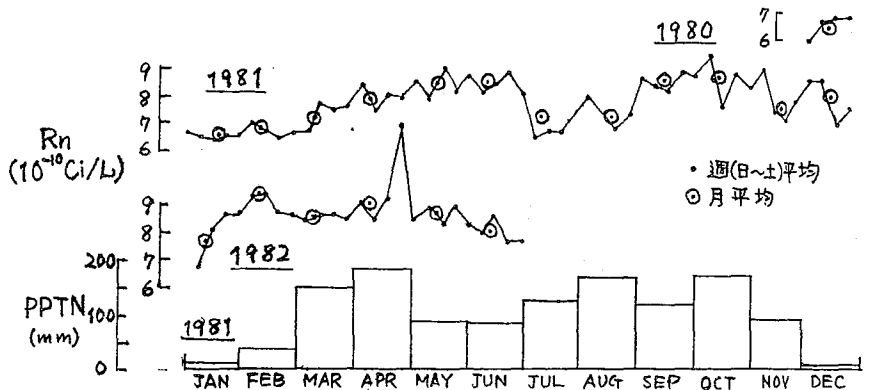
今回は、現在までに解析できた変動パターンの特徴について概略を報告する。

2. 試料水 静岡地域(11箇所)、富士山周辺(13)、西伊豆(13)、大井川流域・牧の原台地(12)、

中遠(9)、西遠(8)

について、定常的揚水(しかも上水道のように生活パターンにムラが少なく比較的揚水量の多いもの)をしているものを可能な限り選んだ。

(地図参照)



地下水のラドン含有量連続測定(静岡大学構内深井戸)

はたえ いつはちろう・はせがわ くにしこ・すがぬま ひであ・よしおか ひろ之・やまおか きよのり・おおしのみ・ながむらきようこ・みやざまこと・おさだかづが

(静大理) 波多江 一郎・菅沼 英夫・大越 実・渡辺 将隆

1. 緒言

近年行なわれている地下水中のラドンによる地震予知に関連して、ポロニウムの定量はその親核種であるラドンの迅速定量法(^{210}Po)としても意義がある。本研究では、ポロニウムの分離・定量法としてジチゾン錯体を用いた溶媒抽出法を適用し、抽出条件の検討及びメンブロンフィルターを用いた試料の前濃縮を行なった。

2. 実験

(2-1) ポロニウムの抽出法 銅ジチゾン錯体 $[\text{Cu}(\text{HDZ})_2]$ - 四塩化炭素溶液による Po の抽出条件を決定するために、 ^{210}Po をトレーサーとして用い、Fig.-1 における振とう時間、 HNO_3 及び $\text{Cu}(\text{HDZ})_2\text{-CCl}_4$ 濃度を变化させ抽出率を測定した。

(2-2) 前濃縮法 メンブロンフィルターによる前濃縮のモデル実験として水道水に添加した Po の回収率に対する溶液の pH、 Fe^{3+} 添加量、放置時間の影響を調べた。その操作を Fig.-2 に示す。

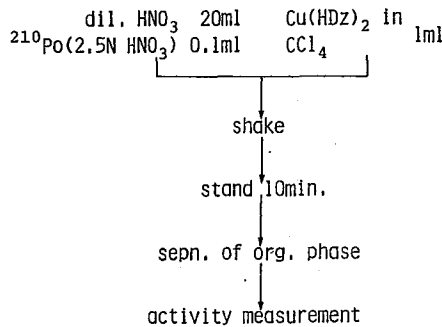


Fig.-1 Extraction Procedure

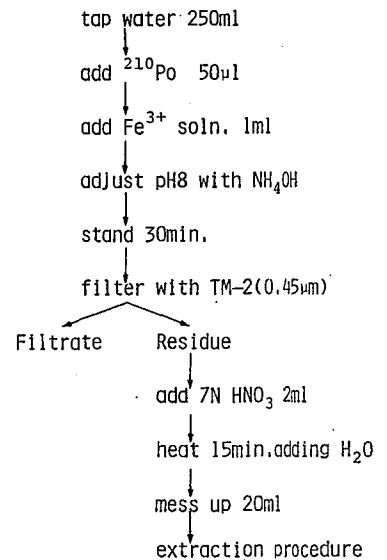


Fig.-2 Preconcentration Procedure

3. 結果及び考察

(3-1) Po の抽出条件 (i)振とう時間: 手で振とうして実験を行なった。その結果90秒以上振とうすれば、93%以上の抽出率が得られた。(Fig.-3) (ii) HNO_3 濃度: 正抽出及び逆抽出を行ない、両方の場合とも0.7Nで最高の抽出率を示した。また2N以上になると $\text{Cu}(\text{HDZ})_2$ が分解されてしまうため抽出率が減少する。(Fig.-4) (iii) $\text{Cu}(\text{HDZ})_2$ 濃度: 濃度によって抽出率は殆ど変化せず、 $2 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ 以上であれば十分である。(Fig.-5) (iv) 妨害金属: (a) Pb 、 Bi は 10 mg の添加でも妨害なし、(b) 共存 Cu^{2+} イオンは 60 ppm になると

はたえいつはちろう・すがぬまひでお・おおこしみのる・あたなばまさたが

妨害、(c) $A_g \cdot H_g$ は錯体が安定なため妨害、(d) 酸化剤が存在するとジチゾンが分解される。

(3-2) Po の前濃縮 (i) pH の影響: Fe^{3+} を添加せずに pH だけを変化させた場合、バラツキが大きく、回収率は pH に殆ど依存せずに水道水中に含まれる微粒子に大きく影響されると考えられる。同様の実験を純水で行なった結果、回収率は大きく減少し、pH の影響を見られなかった。(ii) Fe^{3+} 添加量の影響: 鉄みょうばん [$FeNH_4(SO_4)_2 \cdot 12H_2O$] を水溶液として、また 1N HNO_3 溶液として試験したが、 HNO_3 溶液の方が通過に時間がかかるが、バラツキは小さかった。添加量が 2.0mg になると回収率が減少するのは、 Fe^{3+} の抽出への妨害と考えられ、抽出前にヒドロキシルアミンで還元すると良い回収率が得られた。(Fig-6) (iii) 放置時間: 0~2 時間まで放置時間を変えて行なった結果、1 時間を過ぎると回収率が減少した。これは、 Po の器壁への吸着によると考えられる。(Fig-7)

Po 含有量(絶対値)の決定法については只今検討中である。

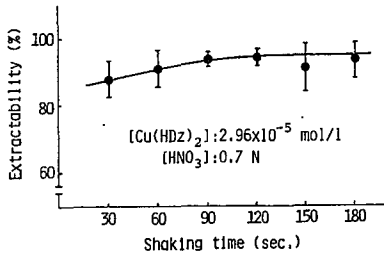


Fig-3 The effect of shaking time on the extractability(%) in the extraction

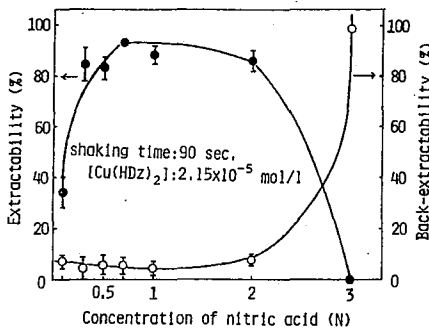


Fig-4 The dependence of the extractability(%) on the concentration of nitric acid in the normal and backward extraction

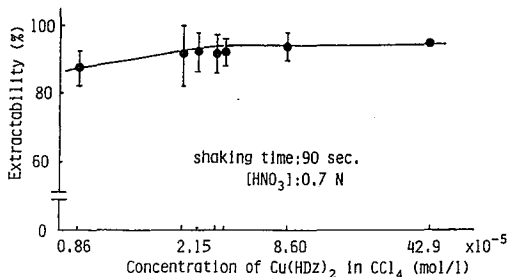


Fig-5 The dependence of the extractability(%) on the concentration of $Cu(HDz)_2$ in CCl_4 solution

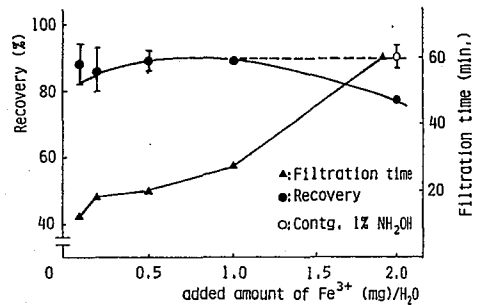


Fig-6 The effect of added amount of Fe^{3+}/H_2O (upper) or HNO_3 soln. (lower) on the recovery and the necessary filtration time

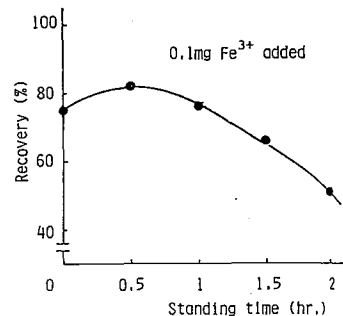


Fig-7 The effect of standing time on the recovery of polonium

オープンバイアル法による地表面よりのラドン放射量とその季節的変動について

堀内公子(都立大理) 秋葉文正(筑波大RI) 石井忠(山梨大RI)
田中富士雄、牧康行(神工試) 村上悠紀雄(北里大衛生)

シンチレータトルエン溶液(20ml)を測定バイアルに入れ、栓をとったままラドン雰囲気中に放置するとラドンが溶け込む。これを液体シンチレーションカウンターを用いた積分計数法によると 5×10^{-13} Ci/l のラドンが測定できオープンバイアル法とよんでいる(*Chem Letters* 投稿中)。検定されたラジウムの一定量を用いラドンを発生させた密閉系、ウラン鉱山の土壌を入れた密閉系、ウラン鉱山などにおいて実験をおこないC.V 7%以下で再現性よく定量できた。

図に示したように至10cm、深さ35cmくらいの穴を都内2ヶ所に掘り、これにオープンバイアルを原則として5日間放置した。52年6月10日より54年3月11日まで2ヶ月間にわたり測定を継続した。同時に気圧、気温、降雨量も求めた。時には回収のおくられる場合や雨などのため、早く引揚げた場合もあるが、バイアルから蒸発するトルエン溶液の量は補正してcpm/dayとして評価した。

これらのデータは、次のように処理して高速フーリエ変換をおこない、ラドン濃度(cpm/day)と気圧、気温、降雨量の相互相関を求めた。(イ)1回の測定(1データ)

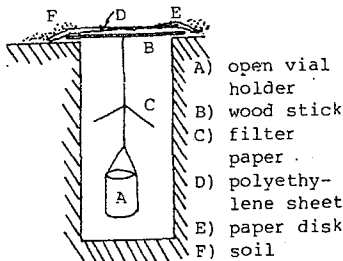


Fig. 1 Open vial in a test hole

期間を5日間とする。実験の都合により、これより長い場合も短い場合もあったが、例えば6日間の測定値をA、つぎの4日間の測定値をBとすると、はじめの値をA、つぎの値を $(A+4B)/5$ とし、すなわち測定値は測定期間中いつでも同一値を示すという仮定である。(ロ)2の乗数倍のデータ数が必要のため $2^7=128$ 点(約2ヶ月)を用いた。(ハ)気圧、気温は日平均値の5日間の平均をその期間の代表値とした。またラドン濃度、気圧、気温、降雨量などは単位が異なるため、計算の必要上、この期間内に得られた各データの最高

値と最小値を選び、この間を100等分して同一フルスケールにデータをそろえて処理した。以上の条件で得られた値をプロットしたものが図2でラドン濃度(cpm/day)、気圧(mb)、気温($^{\circ}$ C)の変化を示している。これらの値をコンピュータに入れフーリエ変換をおこない、つぎのような結果を得た。

(1) ラドン濃度と気圧との関係

横軸に時間(日)、縦軸に相互相関係数を示した。時間0で相互相関係数が約-0.4であることから、両者の間には逆相関があることがわかった。細かな気圧変動があるが約360日の大きな周期にしたがっている。小さな変動はランダムに現れているが10日〜

15日周期の季節変動に相互相関をもっていることがうかがえる。しかも時間0の位置で波形の谷のピークを示すことから、ラドン濃度と気圧の変動との間には時間おくれのないことがわかる。

(2) ラドン濃度と気温との関係

(1)の波形をちょうど半周期ずらしたような波形を示した。時間0で相互相関係数が約+0.35を示すことから、両者の間には正相関をもつことがわかった。気圧の場合と同じように約360日の周期をもち1年間の変動をよく表わしている。しかし(1)と異なる点は細かい変動があまりみられないことと約50日のおくれがあることである。言い換えれば気温が上がる約50日前にラドン濃度がピークに達するといえる。この現象は興味ある事実である。

つぎに気圧と気温との相互相関をとってみると50日~60日おくれの逆相関を示す。このことから気圧の変動に約2ヶ月おくれで気温の変動がおこる。それゆえ地中ラドン濃度は気圧変動に大きく影響されると考えれば上記の現象の説明がつく。気温の変動の影響は気圧の変動に比べて少ない。

(3) ラドン濃度と降雨量との関係

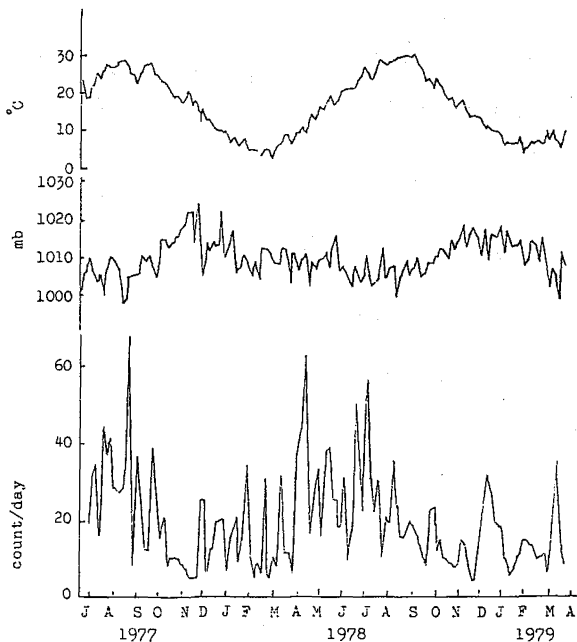


Fig.2 Variation of air temperature, atmospheric pressure and ^{222}Rn concentration

測定期間中5mm以上の降雨量とラドン濃度との関係を調べたが相関はみられない。しかし東京における降雨量を10月~3月と4月~9月の2区分してみると夏季の方が冬季よりよい相関を示すようであるが、回帰直線を求めるほどの傾向を示していないため統計処理は行われなかった。さらに降雨の影響を調べるには土壌の性質や含水率なども検討していく必要がある。

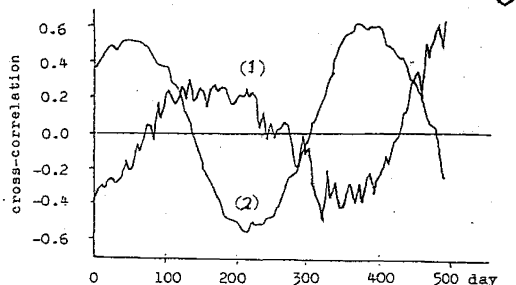


Fig.3 Coefficient of cross-correlation between counting value and atmospheric pressure(1), and between counting value and air temperature(2)

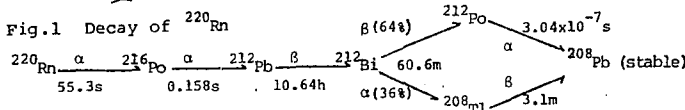
ほりうち きみこ、あきば ふみまじ、いしい ただし、たなか ぶじお、
まき やすゆき、むらかみ ゆまお

トルエン抽出-液体シンチレーションカウンター法による水中トロン定量に関する研究

(都立大・理) 〇平沢 肇、堀内公子、中原弘道
(北里大・衛生) 村上 脩紀雄

〔緒言〕天然放射性元素ラドンはトルエン等の非極性有機溶媒によく溶ける。この性質を利用して、水中に含まれるウラン・ラジウム系列の²²²Rnの定量に、²²²Rnをトルエン相へ濃縮抽出し液体シンチレーションカウンターにより、放射能を測定する方法が用いられているが、本実験では、半減期が55.3秒と非常に短いトリウム系列の²²⁰Rn(以後トロン)について同様な方法を用いて定量する場合の定量条件について検討した。本実験では、Fig.1に示す壊変系列で、

- (1)放射平衡にあるトロンと²¹⁶Poの2核種の放射能を測定して定量する方法
 - (2)トロンと²¹⁶Poが²¹²Pbに完全に壊変してから、²¹²Pb以下が放射平衡に達した後その放射能を測定して定量する方法
- この二つの定量方法について検討した。



〔実験〕1ℓポリエチレンビン中に塩酸でpHをほぼ1に調整した²³²Th, Ra, Pbキャリアを含む既知濃度の²²⁸Th水溶液を、950ml入れ、次に液体シンチレーター(PPOM 0.1%, POPOP 0.1%, トルエン溶液) 50mlを加え、15分間密閉静置する。次にポリエチレンビンを1分間以上振とうし、振とう終了した時間をt=0とおく。次にトルエン相をFig.2に示す分取管を用いて測定バイアルに分取し、振とう終了した時間t=0より、分取し終るまでの時間(分離時間)を測った。(なおトルエン相を測定バイアルに分取する時間は3~5秒だった。)この際に抽出時の水溶液の温度を測定し、さらに測定バイアル中の液体シンチレーターの量も測定した。また用いた²²⁸Th水溶液の濃度は、あらかじめ²²⁸Th水溶液2mlを測定バイアルに入れ、さらにインスタゲルを加え液体シンチレーションカウンターで測定しておいた。

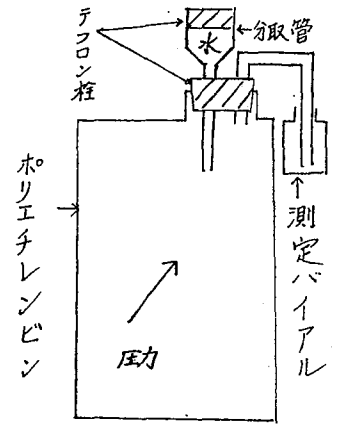


Fig.2

〔結果考察〕(1)トロンと²¹⁶Poの放射能を測定して定量する方法
トルエン相の放射能の減衰曲線をFig.3に示す。長寿命成分を差引くと半減期55.3±1.6秒のトロンの成分が得られた。振とう時間1分、分離時間88±4秒の条件で実験を行ない再現性と定量性を調べた結果をTable 1に示した。表中のA_{Rn(t)}はt=0における半減期55.3秒の成分の放射能値であり、A_{Rn(cu)}は、抽出の際に各相間でトロンの分配平衡が成り立っていると仮定したときに予想される値である。実測値と予想値の比は、平均1.25±0.04にな

からさわはじめ・ほりうちさかこ・なかはらひろみち・むらがみゆさお

り再現性のよいことがわかった。分離時間を一定にして振とう時間を1分から3分まで変えて実験を行ったが、この範囲の時間変化は振とう時間の影響は無視できることがわかった。次に $A_{Rn(0)}/A_{Rn(cal)}$ の比の分離時間による影響を Fig.4 に示した。これから $A_{Rn(0)}/A_{Rn(cal)}$ の比は分離時間に影響されることがわかった。

(2) ^{212}Pb 以下の放射能を測定して定量する方法

トリエン相の長寿命成分の放射能減衰曲線を Fig. 5 に示す。分離後 ^{212}Pb 以下の成分が放射平衡に達する4時間以降は半減期 10.64 hr の ^{212}Pb の成分が得られた。振とう時間1分、分離時間 87 ± 4 秒の条件下で実験を行ない再現性と定量性を調べた結果を Table 2 に示した。表中の $A_{Pb(0)}$ は Fig. 5 に示すように、 ^{212}Pb の半減期の直線下4時間以降の各実験点を0外挿してそれを平均した値である。精度は5%以内だった。 $A_{Pb(cal)}$ は $A_{Pb(cal)} = 3\lambda_{Pb}/2\lambda_{Rn} \times A_{Rn(cal)}$ ($\lambda_{Pb}, \lambda_{Rn}$: ^{212}Pb とトロンの壊変定数) 実測値と予想値の比は、平均 0.84 ± 0.06 になり再現性のよいことがわかった。

以上の結果より、1分間以上の振とうを行ない、分離時間を一定にすることによって、実測放射能値にある定めた係数で補正を加えることにより、本法でトリエンを定量することができた。

Table 1

| $^{228}Th(\mu c)$ | $A_{Rn(0)}/A_{Rn(cal)}$ | separation time (sec.) |
|-------------------|-------------------------|------------------------|
| 0.056 | 1.20 | 92 |
| | 1.23 | 88 |
| 0.113 | 1.31 | 83 |
| | 1.24 | 87 |
| Ave. | 1.25 ± 0.04 | 88 ± 4 |

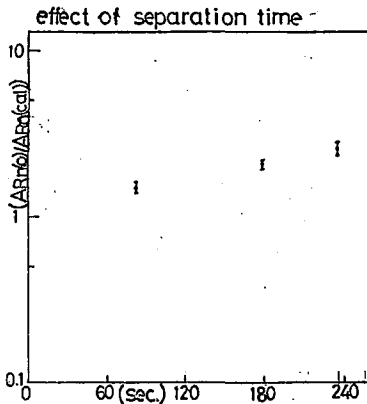


Fig.4

Table 2

| $^{228}Th(\mu c)$ | $A_{Pb(0)}/A_{Pb(cal)}$ | separation time (sec.) |
|-------------------|-------------------------|------------------------|
| 0.056 | 0.94 | 92 |
| | 0.85 | 88 |
| | 0.78 | 83 |
| 0.113 | 0.80 | 83 |
| | 0.81 | 87 |
| Ave. | 0.84 ± 0.06 | 87 ± 4 |

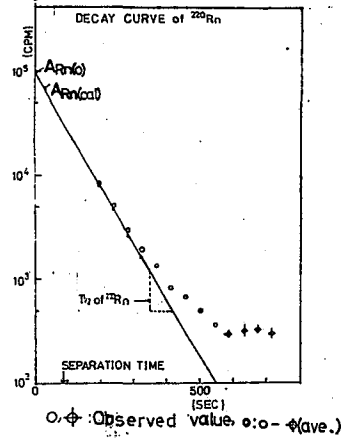


Fig.3

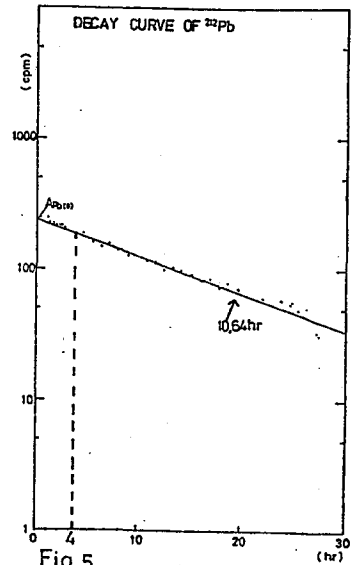


Fig.5

[文献]

1) 堀内公子: 温泉工学会誌, 13, 95 (1978)

((財) 日本分析センター) 上杉正樹、佐藤兼章、大橋直久、樋口英雄
(原研 R I 研修所) 野口正安

1. 諸言 : ラジウムの分析測定方法は多数報告されている。⁽¹⁾ 特、環境調査においては多数試料を取り扱う必要がある。短時間に少ない人数で行える分析手法の開発が要求されて来た。我々は液体シンチレーションカウンタの利点に着目し、測定に至る化学操作の簡略化を検討して来た。⁽²⁾⁽³⁾ その結果、水試料については陽イオン交換樹脂を用い、ラジウムの濃縮・分離・精製を行い、樹脂をそのままシンチレータと共に測定容器に封入して測定する簡便法が得られた。今回は さらに土壌試料への適用を検討したので報告する。

2. 実験 : 土壌試料は岡山県上齊原村村近で採取された表土で、乾燥粉砕し、149 μm のふるいを通ったもの、J B-1 化、標準岩石や土壌を用いた。供試料は土壌(母)とし、検出目標を 0.5 pCi/試料とした。土壌の分解方法の選択、樹脂カラムによるラジウムの濃縮分離の条件、カラムを精製するのに通した E K T A 濃度、最適 pH などの検討は ¹³³ Ba, ²²⁶ Ra トレーサを用いて検討した。樹脂は強酸性陽イオン交換樹脂 (Bio-Rad AG 50 WX 8) を 2 M-NaCl 溶液で Na⁺ 型に調製し使用した。全体の分析操作を図-1 に示した。ラジウムの測定は Aloka 社 LB-1 液体シンチレーションカウンタにより行い、測定バイアルは 100 ml テフロン製バイアルを用いた。

3. 結果 : 土壌の分解方法はフッ化水素酸と硝酸による方法と過酸化ナトリウム融解法を検討した。フッ化水素酸-硝酸分解は試料の分解に時間を要し、その上、pH 調整の操作を行う際に沈殿が先じ、化学回収率が 30 % 程度にまで低下することがわかった。

表-1.

| | (pCi / g) | | |
|--------------------------|-------------|------------|------------------------|
| Sample | S - 1 | S - 2 | JB - 1 |
| added ²²⁶ Ra | 50.4 | | |
| found by normal count | 53.2 ± 0.5 | 2.7 ± 0.23 | 0.42 ± 0.18 0.72 ** |
| found by α-β coincidence | 51.4 ± 1.4 | 2.8 ± 0.31 | 0.65 ± 0.15 0.72 ** |

* recovered activity of added ²²⁶Ra

** Geochemical Journal, vol 5, 151 (1971)

うえすぎまさき、さとうかねあき、おおはしほおゆき、ひぐちひでお、のぐちまさやす

一、過酸化ナトリウム—炭酸ナトリウム融解法はニッケル坩堝を用い約5分間で分解が終了する。ラジウムは炭酸塩と共に沈殿として可溶性ケイ酸塩、ウラン、鉛、アルミニウム等の元素から分離され、化学回収率の低下は認められなかった。

陽イオン交換樹脂カラムには Na型に調製した樹脂を用い、約2 ml/分の流速下、試料溶液を流した。この時、クエン酸濃度を0.05 Mとし、pHを4.0とすることにより、鉄及びニッケルイオンの大部分がマスクされ、かつ、ラジウムが定量的に濃縮されることを確認した。又、0.05 M EDTAによる除染効果を検討し、ラジウムが溶離しない水素イオン濃度はpH 6.0であることがわかった。除染を検討した元素についての除染率は当日発表する。

測定はラジウムの付いた樹脂と気化シンチレータを100 mlバイアルに封入し、ラドンの生成を待って測定した。この時、樹脂中の水分が、ラドンの樹脂からシンチレータへの移行に大きな影響を与えることが液体シンチレーションスペクトルから確認されたが、樹脂中に水分を残しておくことにより、生成したラドンはほぼ一定の割合で、シンチレータに移り、ラジウム添加量と計数率はよい直線性を示した。又、 ^{228}Ra の影響を除くため、 ^{214}Bi と ^{214}Po のコインシデンス計数法適用も検討した。

分析結果の一部を表-1に示した。本法における分析所要時間は120分、計数効率通常測定するとき、420%、 $\alpha\cdot\beta$ コインシデンス法するとき、82%であった。

参考文献

- (1) H. Higuchi: R DIOISOTOPES, vol. 30, 618 (1981)
- (2) 第21回放射化学討論会、講演要旨集, 2 B15 (1977)
- (3) 第19回理工学における同位元素研究発表会要旨集, 5 P-II-4 (1982)

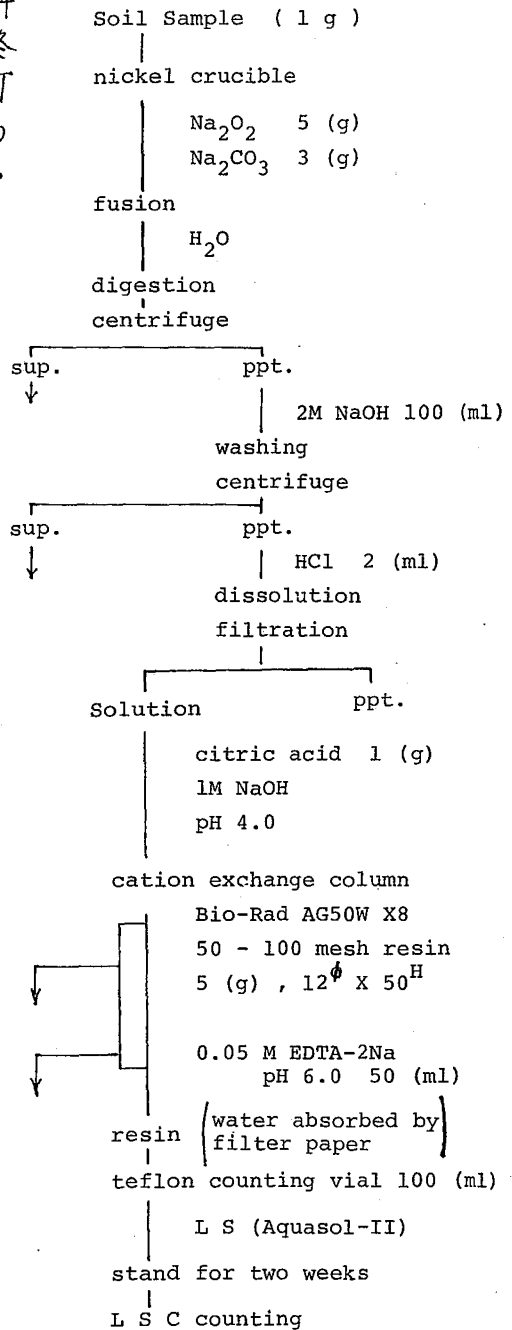


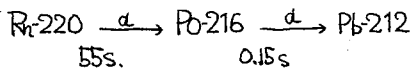
図-1

液体シンチレーションα計数の時間相関を利用した
Th系列核種の絶対測定

(新潟大理) 橋本 哲夫 ○草野 恒 齋藤 仁 外林 武

1. 我々の研究室では、熱蛍光や粒子トラック法を利用した地球化学や年代測定の基本研究を行っているが、いずれにおいてもサンプル中のU、Thの絶対量を測定することが必要である。従来、微量U、Th測定には中性子放射化学分析法や化学分離をともなう放射能測定法が用いられてきたが、そのためには原子炉、MCAなどの機材や複雑な化学操作が必要で、時間もかかり、はははだ不便であると云えよう。そこで我々はこれらの解決のために、P.CROSSのC.C法(相関係数法)を使用して、サンプルから直接U、Thの量を簡便に測定することを考えた。今回はその予備的な実験として、液体サンプル中のThの絶対量を液体シンチレーションカウンターを使用して測定してみた。P.CROSSの方法ではサンプリングは、MCAをMCSモードで使用して測定を行っているが、我々の実験ではパソコンMZ-80K2を使用して行い、さらにデータ処理まで連続して行って、測定を完全にルーチン化している。

2. C.C法について述べる。この方法はトリウム壊変系列中の



という短時間で連続したα粒子放出の時間相関事象を利用してPo-216を定量するものである。ここでサンプルが放射平衡状態にあるとすれば、Po-216の量により親核種Thが定量されることになる。計数される相関事象 N_{pd} は、時間Tの測定では理論的に次式で与えられる。

$$N_{pd} = A \cdot \epsilon \cdot T \cdot \left(1 - \frac{1 - \exp(-\lambda T)}{\lambda T}\right) \tag{1}$$

A: Po-216の放射能 ε: 相関事象の検出効率

またこの N_{pd} は、実験的にはTで連続的に計数していくことにより、次式で与えられる。

$$2 N_{pd} = V - n \tag{2}$$

$$n = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N n_i, \quad V = \frac{1}{N-1} \left[\sum_{i=1}^N n_i^2 - \frac{1}{N} \left(\sum_{i=1}^N n_i \right)^2 \right]$$

N: データ数, n_i : 各データ

①、②式からA(Po-216の放射能)が求まるわけだが、さらに、異なるいくつかのTについて実験値 N_{pd} を求め、T vs N_{pd} の関係を理論的な N_{pd} にフィットさせてAを精密化する。それは次式の χ^2 を、最小にみつけることにより行う。

$$\chi^2 = \sum_{m=0}^5 \frac{(2 N_{pd} - 2 A \epsilon T (1 - \frac{1 - \exp(-\lambda T)}{\lambda T}))^2}{M S D} \tag{3}$$

$$T = 0.1 \times 2^m (\text{s}), \quad M S D = 4 N_{pd} + 2 V^2$$

はしもとてつを 〇くさのひさし さいとうひとし そとばやしだけし

異なるTについてのデータは、もとのデータ(0.1 sごと)を再編成することにより、作り出している。

3. 測定装置は図1に示すようなものである。サンプルはミニバイアルに入っており、アクリル容器で光学的にカップリングしてある。データサンプリングは、M2内蔵のタイマIC8253により0.1 sごとに割り込みをかけて行っている。データのサンプリングが終了した後、③式により数値計算をしてA(Po-216の放射能)を求める。

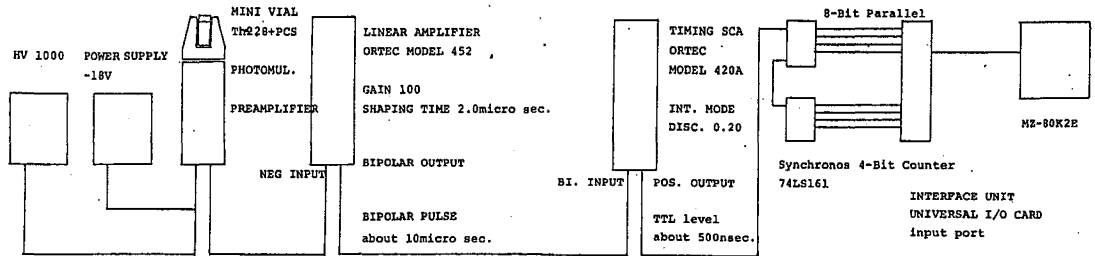


図1 実験装置の簡略図

4. 今回使用したサンプルはTh-228溶液を各1/3ずつ希釈したものであり、Th-228とその下位系列核種間には、放射平衡状態が成立している。したがってPo-216を定量することによりTh-228を求めることができる。各サンプルは一定倍ずつに希釈されているため、希釈率vs A(Po-216の放射能)の関係は、直線ではなければならない。測定の結果を図2に示す。測定時間は各サンプルにつき1228.8 secであり、各希釈率に4つのサンプルを示している。

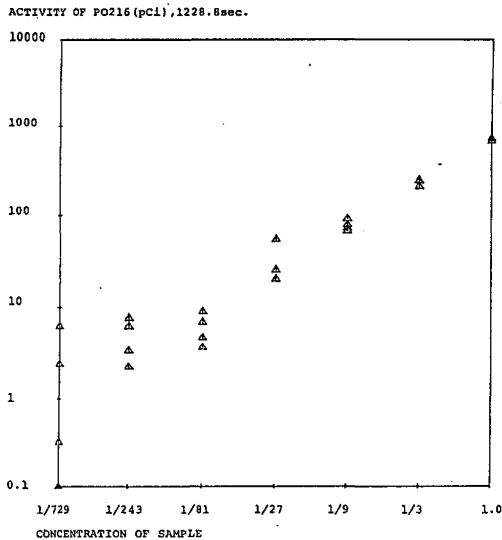


図2 サンプルの希釈率 vs Po-216の放射能(pCi) 考えている。

100 pCi 程度までの放射能強度については、ほぼ満足行く再現性が得られたが、より希釈が進むにつれて、Po-216の放射能強度の再現性が悪くなっている。この原因として装置の長時間安定性が、あまりよくないことなどが考えられる。現在、精度の向上のため、装置の組みかえを検討し、より低レベルのTh系列放射能強度の測定を再現性よく行う努力をしている。また、2のG.C法もとずくTh系列の壊変率の絶対測定法は、液体シンチレーション法では母線の計数も加味されるため、U系列が混入している場合は、結果に含まれる誤差が大きくなる。そこで今後α粒子のみ検出出来るZnS(Ag)など照機シンチレータ計数を

- 1) P. Cross, G.W. McBeth and H.P. RIMMINGTON, Nucl. Instr. and Meth. 125(1975) 425
- 2) V.E. Lewis, D. Smith and A. Williams, Metrologia 9 (1973) 14.

(都立大理) 遠藤和豊 吉川英樹 田中恵子 中原弘道

〔はじめに〕

液体シンチレーターによる β 放射体の測定法は化学、医学、薬学など広い分野で利用されている。また、近年では環境試料中の α 放射体の定量にも応用され、中でもラドンの定量にはその有効性が確められてきている。液体シンチレーターによる α 線の定量の利点は測定試料調整が容易であることと計数効率の高いことであろう。しかし、天然に存在する α 放射体はその核種種に β 放射体をもつものが多くあり、エネルギースペクトルによる定量ではしばしば後者の連続スペクトルと重なり精度が問題になる。この問題を解決する一つの方法として波形弁別法が提案されている。本研究では波形弁別法を用いて、 α 放射体と β 放射体の混合した試料について波形弁別の時間スペクトル上での、両者の相互分離に関する最適条件や、クエンチングの効果などについて検討したので報告する。

〔実験〕

1) 試料の調整 α 放射体としては、中性子照射した硝酸ビスマスより無担体分離した ^{210}Po の希塩酸溶液を用いた。 β 放射体は中性子照射したリン酸ニホ素アンモニウムを用いた。また、 β 線の波形弁別を検討するにあたり、単一エネルギーの内部転換電子を放出する核種として ^{109}Cd 、 ^{139}Ce を用いた。測定には乳化シンチレーター (Insta-gel) 14 ml に対し、1 ml の線源を含む希塩酸水溶液を混合して、純窒素ガスを約5分間通じて溶存酸素を除いた。

2) 測定系 本実験に用いた測定系のブロックダイアグラムを図1に示す。光電子増倍管はRCA 85B、増幅器、波高弁別器等はすべてORTEC社製放射線モジュールを使用した。波形弁別する信号は陽極でもダイノード出力でも、どちらを用いても可能であるが、図に示すようにダイノード信号を用いた場合、陽極信号でエネルギー分析し、時間-波高変換器の出力にゲートをかけ、時間スペクトル上のピークがどのエネルギーに対応するかを確かめた。また、エネ

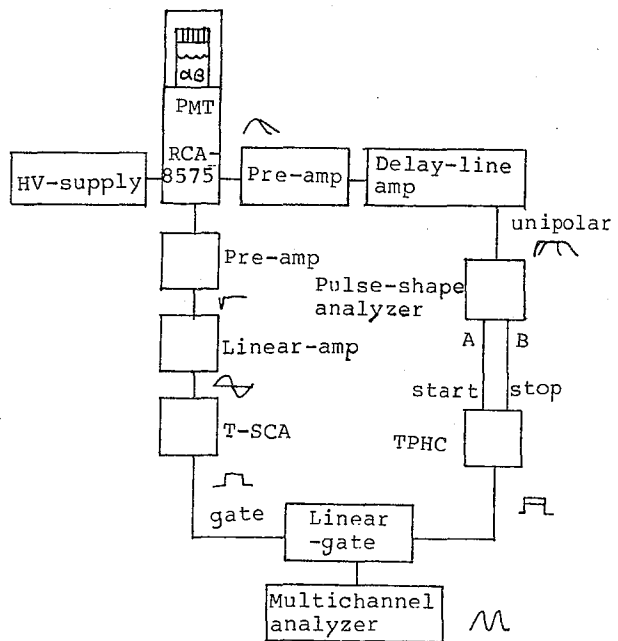


Fig.1 Block diagram of liquid-scintillation pulse-shape discriminator

えんどうかずとよ よしかわひでき たなかけいこ なかはらひろみち

ルギー分析には陽極信号を用いた。

【結果】

液体シンチレーターを用いた測定では試料の放射線が溶媒分子を励起あるいはイオン化し、さらに二次的に溶質シンチレーターを励起、発光させる。この発光に至るまでのエネルギー移行過程では、加えた試料およびその溶液に電子捕捉剤や常磁性化合物、その他が含まれている場合には発光量が減少し、観測される信号はエネルギースペクトルで見れば低エネルギー側にシフトする。本実験ではこれらのクエンチング過程のうち、とくに化学クエンチングがエネルギースペクトルと時間スペクトルにおよぼす効果について検討した。化学クエンチング剤として、四塩化炭素を ^{109}Cd および ^{210}Po を含む溶液に添加した場合の Stern-Volmer プロットを図2に示す。 α 線と内部転換電子とでは、濃度に対する I_0/I の傾きより、クエンチング定数には大きな差は認められなかった。また、この実験より、 α 線の β 線に対する発光効率率は約0.1と計算された。図3に ^{109}Cd と ^{210}Po の波形弁別による時間スペクトルを示す。 α 線は大きなLET (linear energy transfer) をもち、spur内で生成したイオンおよび励起分子は局所的に密度が高く、再結合反応も大きな確率で起りやすいと考えられる。このため、観測される信号の rise time も遅い。また、溶質分子はより高い準位まで励起されるのが多く、同時に励起三重項状態も形成されやすくなる。このため、 α 線による励起ではパルスの decay time が長いことが期待され、時間スペクトルでは遅延時間の長い方に観測される。四塩化炭素濃度に対する時間スペクトルの変化は30mMまで α 線も β 線もほとんどなかった。これはクエンチャーの作用が α 線と β 線による溶媒の励起、イオン化およびエネルギー移行過程で大きく異なるためと考えられる。なお、討論会では ^{212}Po と ^{210}Po の結果についても併せて報告する予定である。

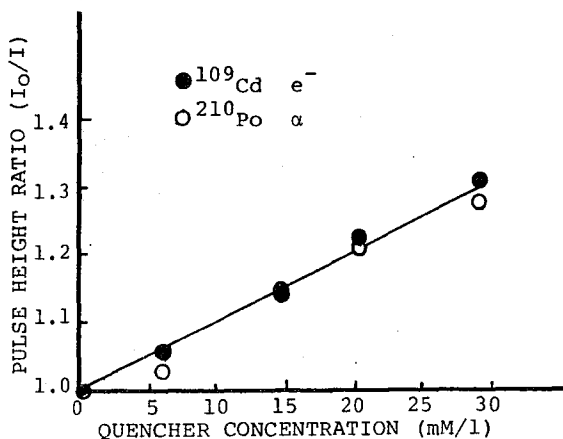


Fig. 2 Stern-Volmer plots for carbon tetrachloride

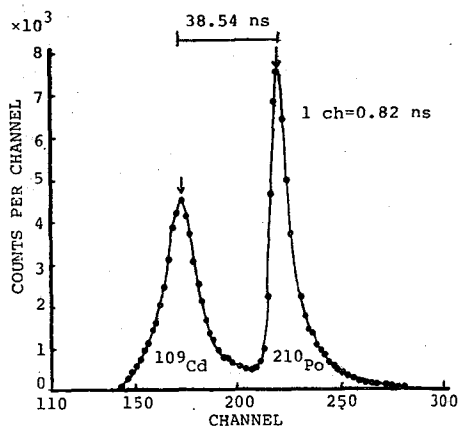


Fig. 3 Time spectrum of ^{109}Cd and ^{210}Po in oxygen-free Insta-gel

液体シンチレーション法による α 線分光の試み

(筑波大・化) 荏司 準

序 液体シンチレーション計測法は試料調製の容易さ、計数効率の高さ等多くの利点を有することから、これまでに軟 β 線試料、 α 線試料をはじめとして数多くの核種に対して広い応用例がある。しかしこの方法によって個々の核種の α 線スペクトルを共存試料について分光した例は、McDowellらの一連の精力的な報告例¹⁾の他にはほとんどなく、手法的に実用上微妙な問題を残しているためにこの方法の普及が妨げられているのではないかと考えられた。本研究では主にMcDowellらの方法を踏襲しながらも、実際の装置の製作、試料の調製、測定を通じて、実用上困難を与えている点をリストアップし、その改善に努めるとともに、この方法自体の現時点での信頼性・有用性を明確にすることを目的とした。

実験方法 1) 測定装置の製作：この方法による α 線分光においては集光装置が1つの重要なカギと考えられるが、図1, 2に示すような試料ホルダーをジュラルミンブロックより作製し、内面にKODAK社製の白色反射塗料を吹きつけ、光電子増倍管との接合点はシリコン系無溶剤型接着剤で封じた。ホルダー内部は中空にした場合、粘性の大きなシリコンオイルを満した場合等条件を変えてみた。シンチレーターを含む試料溶液は、石英製の試料管に1~5ml程度入れてホルダー内部に挿入し、光電子増倍管を含む検出系全体を手製の黑色アクリル製の暗箱におこめた上、さらに、黒色の布等でおおって測定した。

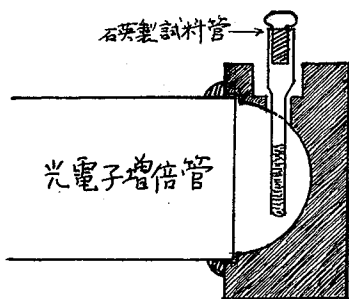


図1 球面形試料ホルダー

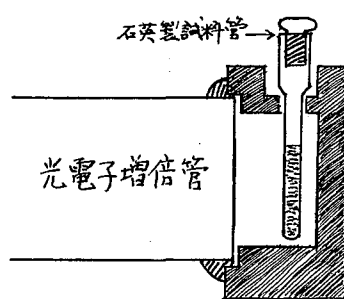


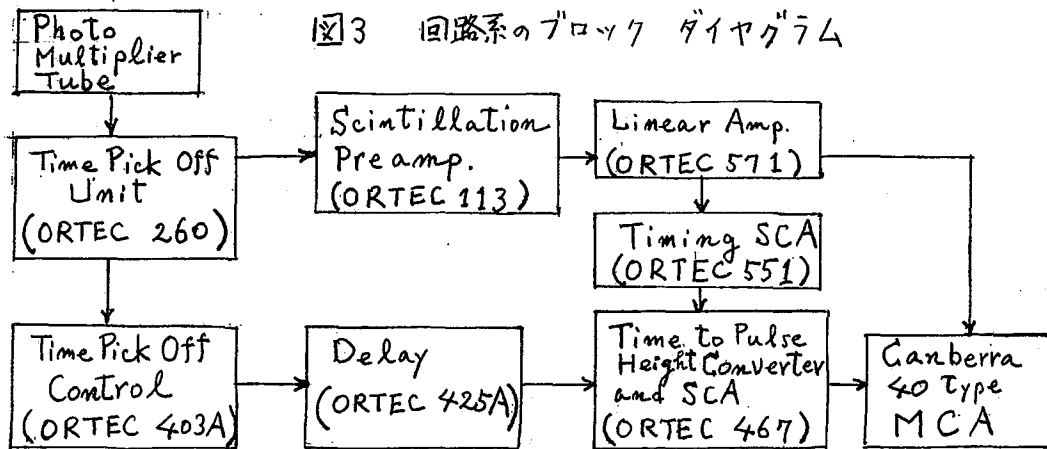
図2 円筒形試料ホルダー

試用した光電子増倍管は浜松テレビ社製のR878型(2インチφ)、同いくR594型(3インチφ)、RCA社製の4518型(2インチφ)などでいずれも10段の増幅方式のものである。回路系としてはさまざまな方式のものが考えられるが、ここでは本文中に主要な方式の一つとしてしばしば登場するTime Pick Off Limitを用いるものを基本的な形として採用した。概略のブロックダイヤグラムを次頁の図3に示す。測定に当ってはTimingをとって α 線以外に起因する信号を除去する試みを行っていることは勿論であるが、そうしないで通常のエネルギー増幅だけの方式でもどこまで到達可

しょうじ ひとし

能の限界を見極めることにも重点をおいている。

図3 回路系のブロックダイアグラム



2) 試料調製: 用いた核種は ^{236}Pu (半減期 2.85 y, α 線エネルギー; 5.77 および 5.72 MeV) と ^{241}Am (半減期 458 y, α 線エネルギー; 5.49 および 5.44 MeV, 同時に 60 keV の γ 線を伴う) であり, 後者は γ 線共存の影響をみるために選んだ。試料はいずれも希薄な硝酸溶液から出発し, これを過塩素酸溶液に加え, 過硫酸塩で処理の後シンチレーターを含む HDEHP (リン酸ジ(2-エチルヘキシル)) のトルエン溶液で抽出し, 有機相の一部をとって測定に供した。この際の有機相の組成は下記の通りである: PBB0 (2-(4'-ビフェニル-6-フェニルベンゾオキサゾール)) 3.9g, ナフタレン 200g, HDEHP 64g / 1ℓ トルエン。単独試料および混合試料につき調製・測定を行った。

結果 現在は装置の製作・組立てが終って, 試料の調製方法を考慮しつつ, 回路系の調整に当たっている段階で, 分解能に及ばず諸因子の明確化等は今後の作業として残されている。特に回路系に対する不慣れから, Timing 信号のとり出し部分の Unit のトラブルでよい Time Spectra がまだ得られていない。ここでは通常の増巾によるエネルギースペクトルを結果の一例として挙げておくにとどめる。

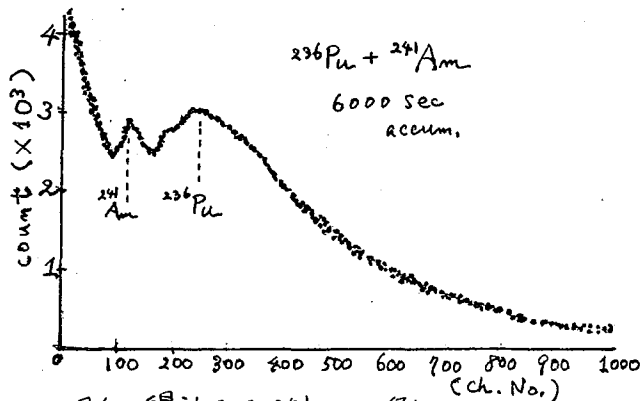


図4 得られたスペクトルの一例

- 1) W. J. McDowell, IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. NS-22, 649 ('75), W. J. McDowell and J. F. Weiss, Health Physics, 32, 73 ('77) など

東医歯大 ○藤井張生 慈恵医大 滝上 誠

原研・RI研修所 油井多丸 原研・RI研修所 石河寛昭

1. 緒言

液体シンチレーション測定のさいの放射能決定法として、現在、外部標準法および試料チャンネル比法が一般に用いられている。しかしながら、これらの方法を適用する場合には、各々の核種について数個から成る一セットのワエンチング標準試料を必要とするため、 ^3H 、 ^{14}C 以外の核種の定量には実用的でない。このため、液体シンチレーション測定装置(LSC)を用いて多くの β 放射体の放射能決定を行なうには、効率トレーサ法が極めて有効である。しかしながら、市販のLSCは、外部標準法および試料チャンネル比法に関するデータ処理機構を有しているが、効率トレーサ法の自動化は未だ確立されていない。従って、我々は増中器のゲイン自動設定装置を開発し、さらにコンピュータによるデータ処理方式を確立することにより本法の完全自動化を計った。

2. 効率トレーサ法の自動化によって得られる利点

- 1) ゲインの半固定化(測定対象核種について同一ゲイン使用可能)
- 2) ゲインの自動切換により微弱放射能の定量に有利
- 3) LSC・ゲイン自動設定装置・コンピュータの三者のオンライン化が可能
- 4) 測定精度および実用性が著しく向上

3. ゲイン自動設定装置の機構

増中器のゲイン自動設定装置の機構を図1に示す。装置は論理回路、リレー、電源およびヘリポットから構成されており、装置の作動はすべてLSCの試料ロード信号およびプリセット・タイム信号によって制御される。ヘリポットはゲイン設定に使用されるもので、本研究では普通のゲイン設定が行なえるようにした。

作動原理は次のようである。まず、標準試料(^{14}C)が試料ロード信号により測定箇所位置すると、この信号により同時にゲイン自動設定装置の論理回路がリセットされる。リセット状態において、論理回路は出力1を生ずるようにしてある。論理回路の出力1の信号により、リレー K_1 が作動し、ゲイン G_1 の状態を試料を計数する。この計数終了時に、本来プリンタへの入力となるべきプリセット・タイム信号を論理回路に送り、つぎに出力2を生ずるようにする。すなわち、2度目の測定はゲイン G_2 の状態で行なわれる。以下同様にして、計数終了時のプリセット・タイム信号によりゲインが G_3 、 G_4 ... G_6 へと自動的に切換えられ、それぞれのゲインにおける計数が得られる

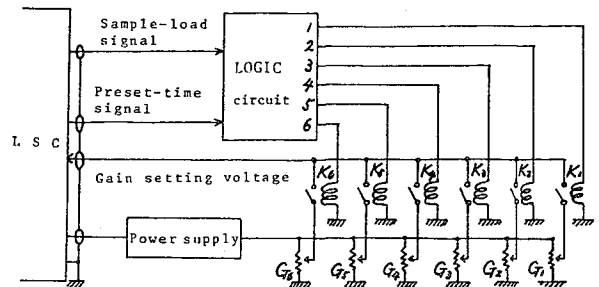


図1 Mechanism of automatic gain setting

ふじいほろお・たきうえまこと・あがらいたまる・いしかわひろあき

。標準試料から測定試料への交換は、LSCのリポート設定信号により行なわれ、以下、標準試料の場合と全く同じ操作が反復されることになる。

4. データ処理

各ゲインにおける標準試料の計数効率と測定試料の計数率の関係を1次回帰($y = ax + b$)で表わし、標準試料の計数効率100% ($x = 1$)までの補外値により測定試料の放射能を決定した。補外値および補外値の誤差に対する適切な評価を行なうにはデータ処理がかなり繁雑になる。このため、本研究ではデータ処理機構としてパーソナル・コンピュータ(Canon AX-1)を使用した(図2)。誤差因子として、標準試料の検定値の誤差、ならびに標準試料、測定試料、バックグラウンド試料のそれぞれの計数の誤差を考慮し、次式により放射能(D)およびその誤差(ΔD)を決定した。

$$D = a + b$$

$$\Delta D = \sqrt{\frac{\sum P_i + \sum P_i x_i^2}{\sum P_i x_i^2 \cdot \sum P_i - (\sum P_i x_i)^2} \sqrt{\frac{\sum P_i (y_i' - (ax_i + b))^2}{4}}}$$

ただし

$$P_i = \frac{1}{\frac{y_i}{t_i} + \frac{nb_i}{t_i} + (a')^2 \cdot x_i^2 \left\{ \left(\frac{\Delta A}{A} \right)^2 + \left(\frac{1}{N_i} \right) \right\}}$$

$$a = \frac{\sum P_i x_i y_i' \cdot \sum P_i - \sum P_i x_i \cdot \sum P_i y_i'}{\sum P_i x_i^2 \cdot \sum P_i - (\sum P_i x_i)^2}$$

$$b = \frac{\sum P_i x_i^2 \cdot \sum P_i y_i' - \sum P_i x_i y_i' \cdot \sum P_i x_i}{\sum P_i x_i^2 \cdot \sum P_i - (\sum P_i x_i)^2}$$

- A ; 標準試料の検定値
- ΔA ; 検定値の誤差
- N_i ; 標準試料の計数率
- y_i ; 未知試料計数率 (測定時間 t_i)
- nb_i ; BG 試料計数率 (測定時間 t_i)
- y_i' ; $y_i - nb_i$ x_i ; 計数効率
- a' ; 効率トレーサ曲線の勾配 (近似値)

5. まとめ

効率トレーサ法の完全自動化ならびに放射能値の誤差の算出方法を確立することができたので、本研究により液体シンチレーション測定における効率トレーサ法が完成したものと考えられる。

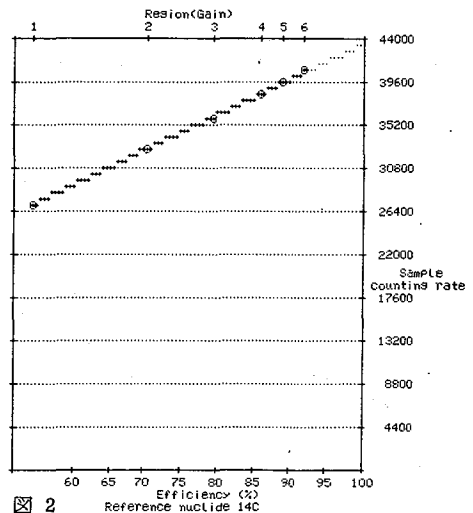
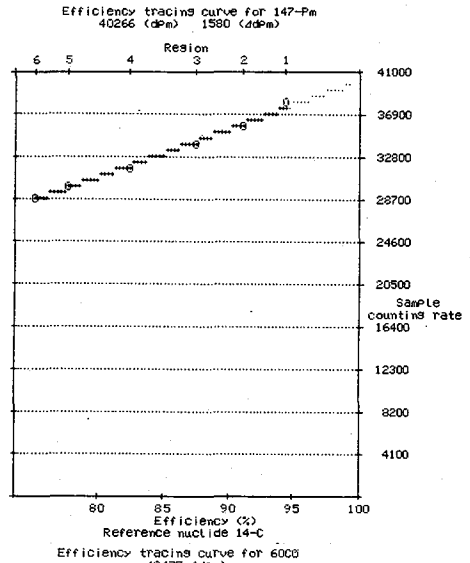


図 2

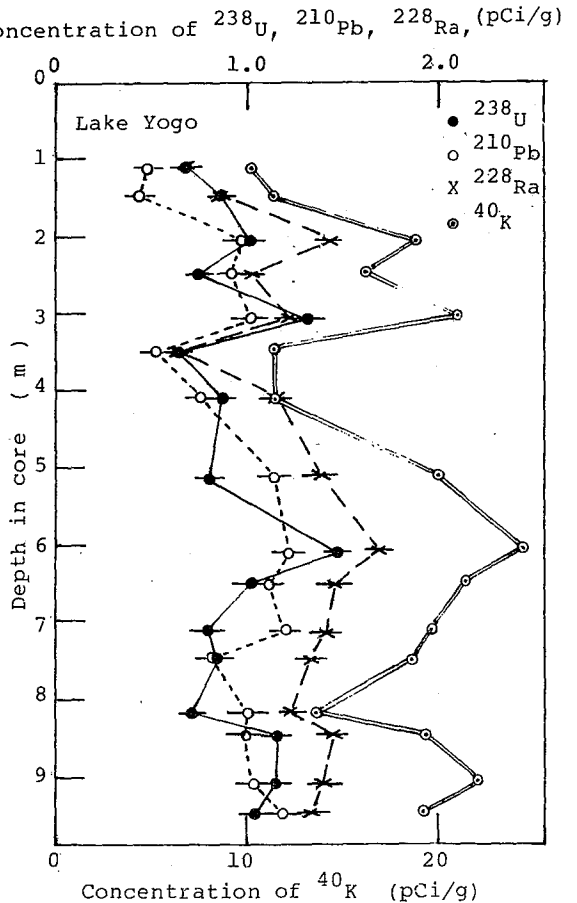
堆積物における天然放射性核種の分布と鉱物組成などについて
 (大放研) 〇恵 和子, 岡 喬, (広島市衛研) 岩崎幸治
 (神戸大) 守川克己, (金沢大理) 阪上正信

I. はじめに 湖底, 海底堆積物における天然放射性核種の分布を把握することは, 地球化学的に, また, 環境の放射能汚染を監視するうえにも基礎的に重要な事項である。余呉湖, 岸和田沖, 水島湾における数メートルの柱状堆積物試料について, ^{238}U , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{40}K の分布, 鉱物組成, 比表面積を測定し, 天然放射性核種の分布と鉱物組成, 堆積環境などについて検討したので報告する。

II. 方法 余呉湖の中心において約10mの, 岸和田沖 ($34^{\circ}28.2'N$, $135^{\circ}18.8'E$) において26mの, 水島湾 ($34^{\circ}28'N$, $133^{\circ}36'E$) において7.5mの柱状堆積物をそれぞれ採取した。各種試料から5.3cm厚さの堆積物を採取し測定用試料とした。放射性核種の含有量はGe(L2)検出器によるγ線スペクトル分析により, ^{238}U は ^{234}Th の63.1 keV, ^{210}Pb は46.5 keV, ^{228}Ra は ^{228}Ac の911 keV, ^{40}K は1.46 MeVのγ線から求めた。含有鉱物組成はX線回折法により, 比表面積は低温窒素が吸着法により求めた。

III. 結果および考察

余呉湖堆積物: 主たる含有鉱物として石英, 白雲母, 長石, カオリナイトが認められた。 ^{238}U , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{40}K の深度分布を左図に, これら放射性核種の濃度, 雲母, 石英の含有量, 比表面積でそれぞれについての相関係数を次頁に示す。各種核種の濃度の間に相関が認められ, 特に ^{210}Pb と ^{228}Ra , ^{210}Pb と ^{40}K , ^{228}Ra と ^{40}K の相関が高い。 ^{210}Pb は ^{228}Ra の親核種であるThと似た挙動を示し, また, ^{210}Pb の親核種は ^{226}Ra であるため, ^{210}Pb と ^{228}Ra の相関は高いと考えられる。 ^{40}K の濃度と雲母に相関が認められるのは一般に知られているとおりカリウムは雲母の二重層の間に存在するためである。 ^{210}Pb と ^{40}K の相関が高いのは Pb^{2+} のイオン半径は 1.20Å で K^{+} の 1.33Å よりやや小さいため K のイオンと置換して雲母などに含まれるためと考えられる。放射性核種は比表面積との間には相関が認められず石英との間に相関が認められ, これら試料



めぐみ・かずこ, おか・たかし, やわまさ・こうじ, やすかわ・かつみ, さかのうえ・まよのぶ

については放射能核種の土壌粒子表面への吸着は考えられない。各核種の濃度の変化には周期性が認められるように古気候との関連が推測される。この柱状試料の約56 mと約85 mの深さに火山灰層が認められ、それぞれの火山灰層において ^{238}U は0.78, 1.60 pCi/g, ^{210}Pb は0.69, 2.22 pCi/g, ^{228}Ra は0.91, 2.73 pCi/g 含まれている。

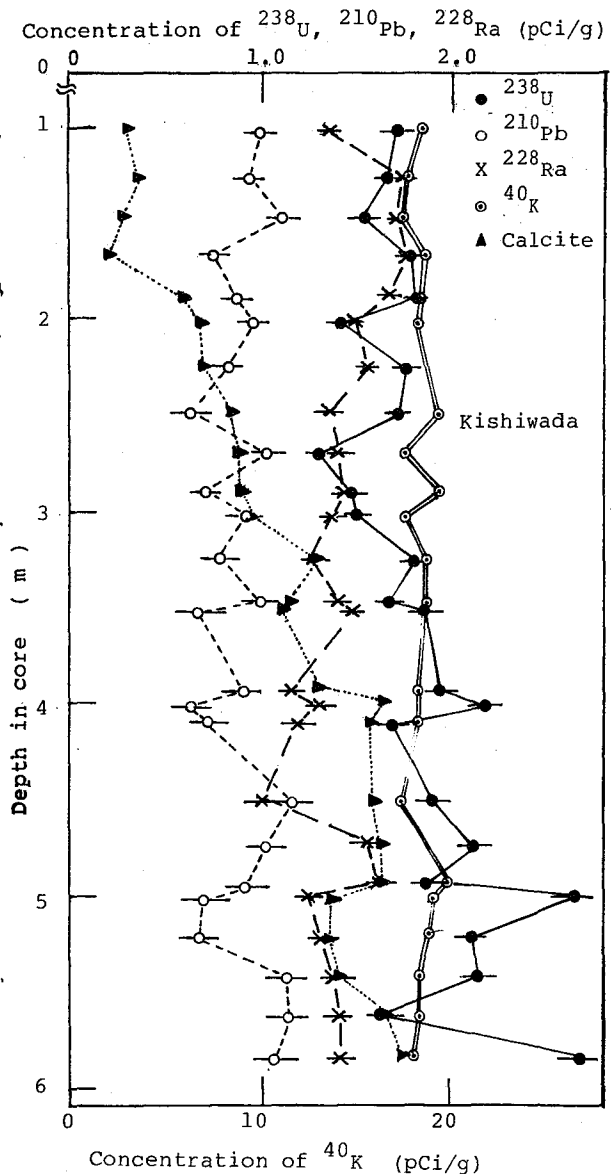
岸和田沖堆積物： 主たる含有鉱物として石英、長石、雲母、カオリナイト、緑泥石、岩塩、方解石が認められた。 ^{238}U , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{40}K , 方解石の深度分布を右図に示す。 ^{210}Pb と ^{228}Ra の濃度間の他には核種間で相関は認められない。 ^{238}U の濃度は深度の大きい部分で増加し、 ^{228}Ra の濃度は深度の大きい部分で減少する傾向が認められる。方解石は深度が大きい部分で含有量が高く ^{228}Ra の濃度との間には-0.82の相関が認められる。14Cに基づく年代測定によれば柱状試料の最下端部で 6240 ± 95 B.P.である。二水と照して深い部分の試料は、古気候との関連から浅い部分より海水の温度が高い時期に堆積し方解石の濃度も高くなったと考えられる。

水島湾の堆積物については ^{210}Pb および ^{228}Ra の濃度と堆積物の比表面積との間には0.74, 0.81の相関係数が得られている。

堆積物における天然放射能核種の分布は水素イオン濃度、水温など環境要素に支配されることから、天然放射能核種の分布から堆積時の様々の堆積環境も類推できると考えられる。

相 関 係 数 (余 吳 湖)

| | ^{210}Pb | ^{228}Ra | ^{40}K | 石英 | 雲母 | 比表面積 |
|-------------------|-------------------|-------------------|-----------------|------|------|-------|
| ^{238}U | 0.52 | 0.67 | 0.74 | 0.73 | 0.64 | 0.02 |
| ^{210}Pb | | 0.88 | 0.85 | 0.55 | 0.60 | -0.15 |
| ^{228}Ra | | | 0.87 | 0.70 | 0.54 | -0.10 |
| ^{40}K | | | | 0.71 | 0.81 | 0.07 |
| 石英 | | | | | 0.36 | -0.18 |
| 雲母 | | | | | | 0.34 |



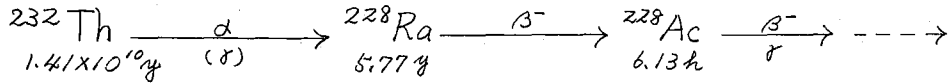
(筑波大学化学系) 〇関 李紀 大輪裕一 武田 徹 池田長生

目的 ラジオアイソトープを利用した地球化学的年代測定にはウラン・ヘリウム法, ウラン・トリウム法, カリウム・アルゴン法などがあるが, いずれも 10^9 年程度の年令の測定に適用されるものである。1~数十年の年代測定の例としては, トリチウム法などの試みがあるが, まだ適当な方法が得られていない。その一つの方法として, ラジウムの同位体 (^{226}Ra , ^{228}Ra) の半減期の違いを利用して, 簡単なγ線スペクトロスコーピーにより1~数十年の年令を測定することを検討した。

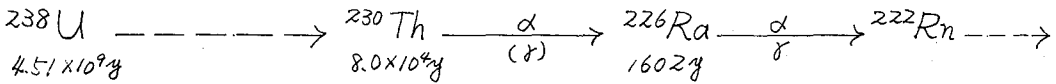
今回は, この方法を強放射能泉として知られる増富温泉(山梨県)に適用し, 温泉沈殿物の年代測定を試みた結果について報告する。

原理と方法 ウラン系列の ^{226}Ra とトリウム系列の ^{228}Ra は, それぞれ長半減期の ^{230}Th (7.52×10^4 年), ^{232}Th (1.41×10^{10} 年) のα壊変で生成し, それぞれ1602年, 5.77年の半減期でさらに壊変を続ける。(下図参照)

Thorium series



Uranium series



トリウムは水に難溶であるが, ラジウムはよく溶解する。それで温泉水中におけるトリウムの溶出・存在は無視できるものと仮定する。また沈殿物生成時の沈殿物中のラジウム同位体比は温泉水中のラジウム同位体比に等しいと仮定する。温泉沈殿物中のラジウム同位体比は個々のラジウム同位体の半減期に従って変化する。 ^{228}Ra は直接γ線を放出しないが, 娘核種の ^{228}Ac がγ線を放出するので, 放射平衡に達した後に, γ線スペクトロスコーピーを行えば, ^{228}Ra と ^{226}Ra の放射能比を測定することができる。

沈殿生成時からの時刻 t における ^{228}Ra , ^{226}Ra の放射能をそれぞれ, A_{1t} , A_{2t} とし, 壊変定数を入 λ_1 , λ_2 とすると,

$$A_{1t} = A_{10} e^{-\lambda_1 t}, \quad A_{2t} = A_{20} e^{-\lambda_2 t}$$

放射能の比をとり, 式を整理すると, 年令 t は次式により求められる。

せきりき・おおわゆういち・たけだとおる・いけだながお

$$t = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left[\left(\frac{A_{10}}{A_{20}} \right) / \left(\frac{A_{1t}}{A_{2t}} \right) \right]$$

$t = 0$ におけるラジウム同位体比 A_{10}/A_{20} としては、現在の温泉水についての同位体比の値を用いるものとする。

測定試料として、増富鉍泉（山梨県）の二、三の温泉、湧泉で温泉水、泥殿物を採取した。温泉水は塩化バリウム水溶液を加え、硫酸でラジウムを共沈させ、分別したものを3日以上放置した後、Ge(Li)半導体検出器で測定した。温泉泥殿物は風乾後乳鉢ですり、粒度を100メッシュ以下にそろえて、 γ 線を測定した。 ^{228}Ra は ^{228}Ac の911 keV、 ^{226}Ra は186 keVの γ 線のピーク面積から求めた。

結果 泥殿物の γ 線スペクトルの1例を図1に示す。津金橋・吐月庵・道路沿いの湧泉において $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ の放射能比は1.3~6.0 とかなり異なる値をとるが、1979年8月、12月、1981年11月に採取した同一の温泉水では大きな変化はみられなかった。各温泉の湧出口附近の泥殿物はいずれも1~10年の年齢を示し、河原で採取した古い堆積岩は20~50年の年齢を示した。表1に1例を示す。

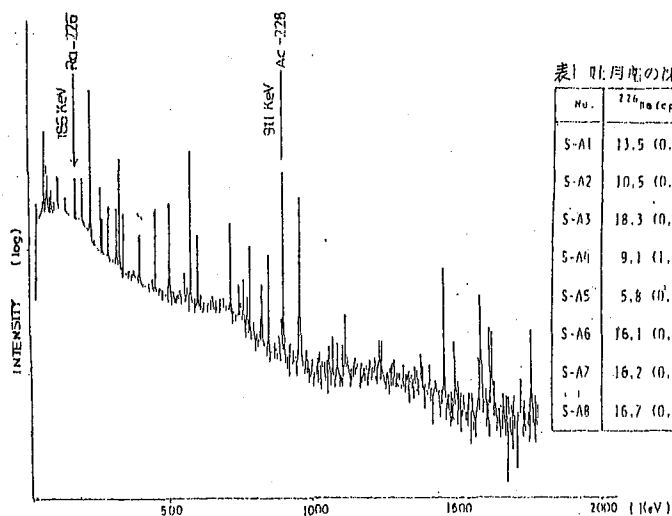


表1 吐月庵の泥殿物 A の測定結果

| No. | ^{226}Ra (cpm) | ^{228}Ra (cpm) | $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ | Age (y) |
|------|-------------------------|-------------------------|-----------------------------------|---------|
| S-A1 | 13.5 (0.7) | 65.5 (0.3) | 4.85 (0.8) | 1.9 |
| S-A2 | 10.5 (0.9) | 50.5 (0.4) | 4.81 (1.0) | 1.8 |
| S-A3 | 18.3 (0.6) | 86.2 (0.3) | 4.71 (0.7) | 2.0 |
| S-A4 | 9.1 (1.0) | 41.0 (0.5) | 4.51 (1.1) | 2.3 |
| S-A5 | 5.8 (0.8) | 12.8 (0.5) | 2.21 (0.9) | 6.3 |
| S-A6 | 16.1 (0.4) | 31.7 (0.3) | 1.97 (0.5) | 9.1 |
| S-A7 | 16.2 (0.8) | 32.5 (0.6) | 2.01 (1.0) | 9.1 |
| S-A8 | 16.7 (0.7) | 29.3 (0.6) | 1.75 (0.9) | 10.2 |

() = 計数における%誤差

図1 吐月庵の泥殿物の γ 線スペクトル

非破壊測定によるウラン系列非平衡の簡便な測定法

—ウラン二次鉱物への適用—

(金沢大・LRL) ○ 柳沢美樹男・水村和久・阪上正信

ウラン系列核種の非平衡は核地球化学的に重要な知見を与える。一方、その測定法としては放射化学分離の測定に加えLEPS (Low Energy Photon Spectrometer) を用いた非破壊測定法も注目される。本研究では、放射平衡の度合の異なる種々の放射性鉱物について、主として簡便・迅速な非破壊測定により検討した結果を報告する。LEPS測定では、U系列核種のうち低エネルギーα線放出核種、 ^{232}Th (63, 93 keV), ^{226}Ra (186 keV), ^{214}Pb (242, 295, 352 keV), ^{210}Pb (46 keV) と ^{235}U (186 keV) 等を比較的高率よく測定できる。なお、α線測定では、U系列核種のうち地球化学的に重要な $^{232}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は測定できず、また ^{230}Th (T_{1/2}) の測定は精度が低いため、これについてはオズパクトロメトリーが必要である。

《試料》 岐阜県土岐・瑞浪両市にまたがる東濃ウラン鉱床近郊の放射性鉱物、および人形石など内外のウラン鉱物。

《α線測定》 U濃度の高い試料については、試料自身の自己吸収の影響を少なくするとともに、丈夫なプレス線源を作る目的でNaCl粉末と試料を混ぜ50 mmφのディスク状線源(約10g)を作成した。なお、NaCl中のU系列放射能は検出限界以下であることを確かめた。Uの標準線源も同様の操作で作成した。線源はラップとポリシートにより封入し、 ^{222}Rn が洩れない袋に1ヶ月程度保管し、 ^{222}Rn 以下娘核種の生長を待って測定を行った。

《α線測定》

試料の一部を精製し、フッ酸・王水・硫酸により完全に試料を分解した後メスフラスコに希釈しその一定量をピペットで分取し分析を行った。UとThの化学収率を求めたため $^{228}\text{Th}/^{228}\text{U}$ 比(=1)既知の ^{222}U 溶液一定量をトレーサーとして添加し、水酸化鉄米光塩酸系陰イオン交換法によりUとThを分離した。UはDEBK(酸の除去)、酢酸エチル抽出と陰イオン交換法により、またThは陽イオン交換法により精製し、それぞれをステンレス板上に電着し、α線測定線源とした。α線測定は、Si(Au)半導体検出器を用いた、オズパクトロメトリーを行い ^{232}U , ^{234}U , ^{230}Th を定量した。

《186 keV α線の解析》

186 keV α線は ^{226}Ra と ^{235}U からの寄与があるため、放射平衡にある天然ウランを用い、186 keV α線の全計数に占める ^{226}Ra と ^{235}U の寄与を正確に測定した。

放射平衡にある試料としてNBL標準U試料を、また、娘核種を含まない試料として、精製した天然U試料を用いて、63 keV α線と186 keV α線を精密測定した。放射平衡にあるNBL標準U試料では、186 keV α線の ^{226}Ra と ^{235}U の寄与として59:41を得た。この値は文献値*のB.R.(分岐比)から得られる値(57:43)にほぼ一致する。使用した15 cm² × 7 mmのGe-LEPSでは186 keV / 63 keV α線の計数率の比は $^{226}\text{Ra}/^{235}\text{U}$ 比が0.65/1の試料に対し、それぞれ0.21および0.52(±0.02)である。

○ やなぎさわ みきお ・ さむら かずひさ ・ さかのうえ まさのぶ

《放射平衡の簡便測定とその結果》

左に述べた、計数率の測定値を用いることにより、以下の方法でU系列核種の放射平衡の度を簡単に求めることができる。

図2に示すように、横軸に63keVの線に対する186keVの線の比を取り、縦軸に63keVの線に対する²¹⁰Pbの46keV、²¹⁴Pbの242、295、352 keVの線の比をそれぞれプロットする。ここで、1つのSampleは縦に並んだ4つの測定点で表わされる。

図中、186keV/63keVの線のピーク比0.522のところから縦に引いた点線より、測定点が左側に来る場合には、放射能比で²²⁶Ra/²³⁸U < 1の未平衡状態、逆に右側に来る場合は、²²⁶Ra/²³⁸U > 1に相当する。一方、²²²Rnの損失のない試料では63keVの線に対する²¹⁴Pbの各ピークの比は、図の各斜線上にのることになる。これらの線より低い場合は²²²Rnの損失あるいは、²²²Rnの生長が不十分な未平衡の状態に対応する。この様な方法で、²¹⁴Pb/²²⁶Raおよび²¹⁴Pb/²³⁸U比を求めることができる。また46keV/63keV比が斜線より高い場合は²¹⁰Pb/²³⁸U > 1に対応して²¹⁰Pbの付加、あるいは²²⁶Raの溶出などが考えられる。

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} \approx ^{214}\text{Pb}/^{238}\text{U} \approx ^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ の試料はU及び娘核種の間に閉鎖系が成立しているものと考えられ、この値が、1より小さい場合は、新鮮なUの二次鉱物を含むもの、1より大きい場合は $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U} > 1$ または、 I_0 以下娘核種が過剰にある試料と判断される。

これらの結果およびU系列の測定の結果を考へあわせるとともに、採取地'の地質年代や地形地下水の影響の可能性などを総合的に検討することにより、傾度の成因やその時間的推察等に関して有用な知見を得ることが可能と思われる。

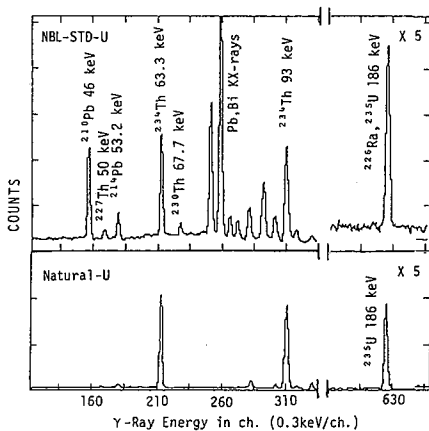
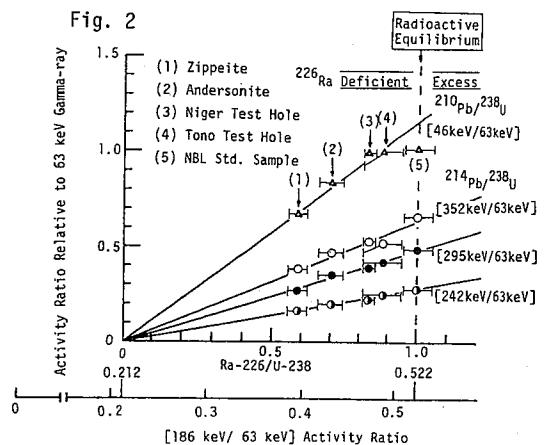


Fig. 1

NBL標準U試料(上)と天然U試料(下)のLEPSスペクトル。(186keVピークは計数を5倍に取ってある。)



Simple graphical method to determine the equilibrium state of U-series nuclides.

* ORTEC Quick List of Nuclear Decay Data

化石骨中のU系列核種の平衡関係と年代

金沢大理 LLRL ○小村 和久・柳沢美樹男

化石骨の年代測定は人類学では非常に重要な課題であり、測定法の確立が強く望まれている。数万年から数10万年の年代をもつ試料に対しては $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 比の測定に基づいた I_0 法のほか、放射線損傷を利用した ESR法やアミノ酸のラセミ化を利用する年代測定が試みられている。

化石骨には通常 $10\sim 100\text{ppm}$ の U が含まれており I_0 法を適用するには好都合であるが、リン酸カルシウムを主成分とする化石骨や化石歯などでは化学分離の際にリン酸イオンが妨害し U, Th の収率が悪くなることしばしば起る。そこで化石骨等の年代測定の簡便化・迅速化をはかる目的で非破壊 γ 線測定を主とした U 系列核種の非平衡の測定にちなみ年代測定を検討した。 γ 線測定では定量が困難な U 同位体比 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ および ^{230}Th については α スpektロメトリーにより求め、 γ 線測定値と合わせて年代の推定を行った。

【化石試料および測定線源の調製】

研究に用いた化石試料は山口大・池谷教授より提供されたもので、北京市郊外の周口店で発掘された肢骨、馬の臼歯および黄色人種の祖先といわれるタリ人の人骨試料である。各試料は、大よその U 含有量を見積るため、Ge-LEPS による平衡測定を行ったのち、付着している土壌をとり除き、やや汚染のみられる表面部分と、汚染の少ない芯の部分に分けて測定試料とした。試料の一部をとりフィッコントラック法による U の濃度分布の測定用試料を作製した。各試料 $5\sim 15\text{g}$ を乳鉢で粉砕し、油圧器を用いて直径 35mm の円盤状の γ 線測定線源を作製した。 γ 線測定の後、一部をとり U および Th 同位体の分析を行った。化学分離の収率補正のため ^{232}Th 、 ^{228}Th を一定量加えた後、酸による溶解、水酸化鉄共沈イオン交換および溶媒抽出による U, Th の精製を行い、ステンシル板上にそれぞれ電着して α 線測定線源を作製した。

【測定】

各試料は十分に遮蔽を行った Ge-LEPS ($43.7\text{mm}\phi \times 7\text{mm}$ 高さ) および同軸型 Ge(Li) 検出器 (rel. eff. 15%) により $2\sim 4$ 日間 γ 線測定を行った。図 1 に周口店で発掘された化石骨の LEPS スペクトルの例を示す。 ^{234}Th の 63keV γ 線より ^{238}U の 186keV γ 線と ^{226}Ra (^{238}U の衰壊生成物)、 46keV γ 線より ^{210}Pb をそれぞれ定量する。一方 Ge(Li) スペクトルからは ^{214}Pb 、 ^{214}Bi を定量し、 ^{222}Rn の検出について検討した。他方、電着線源は Si 検出器を用いた α スpektロメトリーを行い ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th をそれぞれ定量した。

【結果】

γ および α スpektロメトリーの結果を表 1 に示す。両法による U 含有量は非常によい一致を示しており、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比の値も誤差の範囲内を合っている。化石骨・化石歯の白色部分(汚染が最少少ない芯部分)の U 系列核種の値は $^{230}\text{Th} > ^{226}\text{Ra} > ^{210}\text{Pb}$ となっており、 ^{226}Ra あるいは ^{210}Pb の放射線から ^{230}Th の定量を行うことは困難である。

こむらかすひき、やなぎまわ みきお

この様な化石骨・歯ではU系列の母核種間は無鎖系であるとの仮定は成立していないと考え、年代の推定を行う必要がある。 ^{230}Th は地下水等の作用で系外へ流出するとは考えにくいので、 ^{226}Ra の流出および気体の ^{222}Rn の損失が起っているものと思われる。これら母核種間の非平衡の度合は組織が多孔質の骨試料で大きいことは容易に理解できるが、非常にち密な硬い組織をもつ歯でさえも程度は少ないとはいえず非平衡にあるのは意外に思われる。一方、U含有量の少ない土壌汚染のある褐色部(周口店)では ^{230}Th と ^{226}Ra と ^{210}Pb であり、猿人骨の付着土壌でも非平衡の度合は少ない。これらの結果は、年代測定用の試料としては、土壌などの他の汚染部分を極力取り除く必要があることを示している。

αスロクトロメトリによる $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比は周口店発掘の2試料で1.31~1.33、猿人骨では1.7~1.8の高い値となった。両者の違いは試料の埋没環境でのUの供給源と考えられる地下水のU同位体比を反映していると思われる。これらの試料は数10万年以上の古い化石であり埋没して化石化がある早い時期にUがとり込まれたものと考えれば、最初の $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比は測定値よりもっと大きく ≥ 1.6 をいし ≥ 2.5 であったものと推定される。

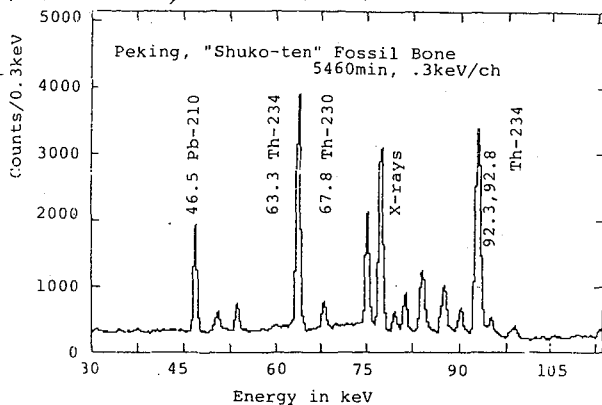
化石骨、化石歯などの $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比が1よりかなり大きいため、非破壊αスロクトロメトリで年代を推定するのは、 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比の知られていないサンゴの場合と違ってほとんど不可能である。試料の年代を求めるには、少なくともαスロクトロメトリによるU同位体比の測定が必要である。またγ

スロクトロメトリによる ^{230}Th の測定精度は、αスロクトロメトリに比べてはるかに劣るうえ、感度も低いため、若い試料や放射平衡に近い若い試料では、化学分離・α線測定によるIc値による方が得やすい。

α線測定の結果から得られた試料の年代は、周口店発掘、化石骨で38±7万年、馬の臼歯化石で22±3万年となった。これらの値は、従来いわけていた推定年代とよく合っており、妥当な値と思われる。

以上のほか、山口県宇都で発掘されたシカの角骨、アフリカNamibで発掘された骨の測定を行っており、これらの結果についても合わせて発表する予定である。

表. 化石試料のU含有量およびU系列核種の放射能比
G: 非破壊α測定
A: α線測定



四. 周口店発掘 股骨化石のLEPSスロクトロ

URANIUM SERIES NUCLIDES IN FOSSIL SAMPLES

| Sample | Method of Analytix | Uranium Content (ppm) | (Unit in Activity Ratio) | | | | Estimated Age ($\times 10^5$ y) | |
|--------------------------|--------------------|-----------------------|--------------------------|---------|---------|--------|----------------------------------|------|
| | | | U-234 | Th-230 | Ra-226 | Pb-210 | | |
| [Shuko-ten, China] | | | | | | | | |
| 1) Fossil Bone | | | | | | | | |
| White P. (14.5 g) | G | 28.5/9# | | 1.29/8 | 0.70/3 | 0.49/2 | 32石 | |
| Brown P. (6.0 g) | A | 26.9/6 | 1.31/2 | 1.32/3 | 0.78/25 | 0.75/8 | 0.84/4 | 38±7 |
| 2) Fossil Tooth of Horse | | | | | | | | |
| White P. (15.9 g) | G | 30.3/9 | | 1.23/9 | 0.96/4 | 0.76/9 | 2.2石 | |
| Brown P. (5.26 g) | A | 32.0/7 | 1.33/2 | 1.23/3 | 2.18/10 | 1.33/5 | 0.87/3 | 22±3 |
| [Dali, China] | | | | | | | | |
| 3) Fossil Bone | | | | | | | | |
| White P. (12.5 g) | G | 172.3/5.1 | | 2.35/12 | 1.36/4 | 0.80/3 | ----- | |
| Brown P. (5.26 g) | A | 171.4/3.8 | 1.81/2 | 2.20/6 | 2.07/5 | 2.07/5 | ----- | |
| Soil (7.47 g) | G | 12.9/4 | | 2.08/29 | 2.67/18 | 1.74/9 | ----- | |

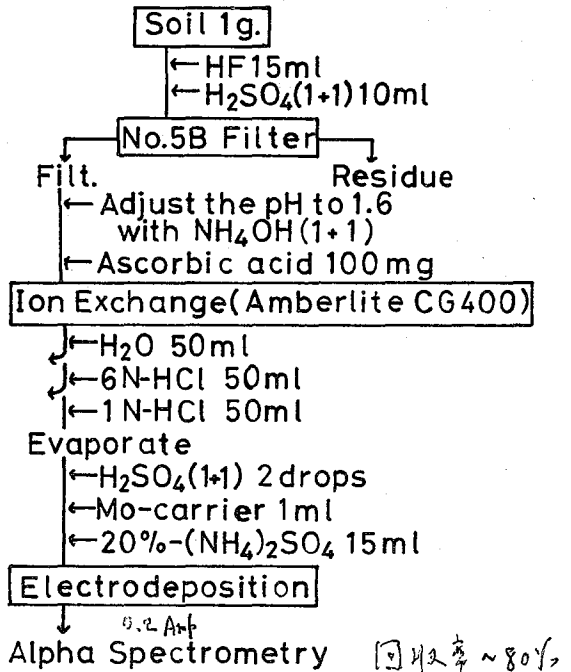
for convenience 28.5 ± 0.9 is expressed by 28.5/9.

(北海道立衛生研究所) ○福田 一義
(国立衛生試験所) 龜谷 勝昭

1 はじめに 微量のウランが測定されるに至って、その含有量や同位体の存在比、また、例えば²³⁸Uと²³⁴Uとの間のような非平衡が報告されている。ウランは天然に存在し、地殻に源を発する放射性核種であるから、供給源の異なるもの、例えば降水等による降下物の動向を知る上で、両者の比較から多くの情報を得ることが期待される。土壤中のウランについては、その分解法が難しく、多くの例をみない。我々はα線スペクトロメトリーによって、土壤中のウラン同位体を測定する分析法を検討し、満足のゆく結果が得られたので、ここに報告する。

2 分析法とその検討 土壤試料は、北海道各地の牧草地より採取した表層土(深さ、0-5cm)であり、風乾細土として保存しておいた。この風乾細土1gを白金皿中に精秤し、電気炉で500℃にて2hr灰化後、再び精秤して乾土重量とした。分析法を第1図に示す。フッ化水素酸-硫酸による加熱分解が十分に進んだならば、温度を無水硫酸の白煙が生ずる330℃まで上げてフッ化水素酸を除く。以下の操作はガラスビーカーに移して処理して良い。最終的に、ウランをステンレス板(径23mm,厚0.5mm)上に電着させ、Si半導体検出器にかけて1万秒計測する。ウラン標準液(1μg-U/ml)を用いて分析法を検討した。硫酸アンモニウム溶液から微量のウランを定量的にステンレス板上に電着させるにはモリス担体が必要であること、その量はα線の自己吸収を少なくするために10μg以下にすべきこと、電着時間は1hrで良いこと等が明らかになった。そこで、加えるMo担体量を10μg、電着を0.2Ampで2hrとした。ウラン標準液の添加試験による土壤からのUの回収率は86%、計数効率39.0%、土壤の灰化から電着によるUの分離までに要した時間は2日であった。

3 結果と考察 試料採取地を第2図、土壤中のウラン含有量(μg-U/g乾土)および²³⁴U/²³⁸Uの同位体比を第3図に示す。U含有量の平均値は1.6μg-U/gであり、日本海沿岸地域にやや高い値が認められる。これは降雪を主とする降水によってもたらされる降下物の寄与と考えられる。検出されたUの同位体は、²³⁸Uと²³⁴Uだけであった。²³⁴Uは



第1図 Analytical schemes

ふくだ かずよし かめたに かつあき

1μg
>1hr electrolysis

親の ^{238}U と放射平衡に達し、その同位体比は1に等しいことが予想されるにもかかわらず、同位体比の平均値は1.07であり、非平衡が確認された。

札幌(採取地は図3の9とは異なる)において、0-5 cmと5-20 cmの二層にわけて採取した場合、U含有量はいずれも0.8 $\mu\text{g-U/g}$ 、

同位体比は、夫々、1.11, 1.36であった。これは、 ^{238}U の崩壊による反跳効果を受けて、生成した ^{234}U が親の ^{238}U に比べて水に溶解し水易い形であって雨水等によって下層に移行し、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ の同位体比が大きくなったものと考えられる。

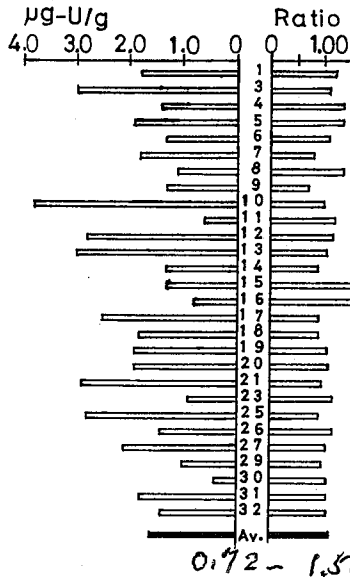
核実験によって人工的に作られた

核種の分布は、前述した降下物の寄与を反映するに違いない。参考資料として、土壌と同一の地点で採取した牛乳と牧草中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 含有量(Bq/10g-ash)を第4図に示す。第3図と比較してみると、日本海沿岸地域ではどちらも高い値が認められ、濃度の異なる降下物の寄与のあることが伺える。一方、根釧台地域や新得付近では随分と様子が異なっている。これは、降下物の寄与は他の平均的な地域とあまり変わらないが、その大部分が表層付近に貯留していて下層に浸透しにくい地形であることを示唆するものであろう。今後の課題として、土壌中のウラン含有量と同位体比あるいは ^{90}Sr や ^{137}Cs 含有量の鉛直分布を明らかにしてゆきたい。

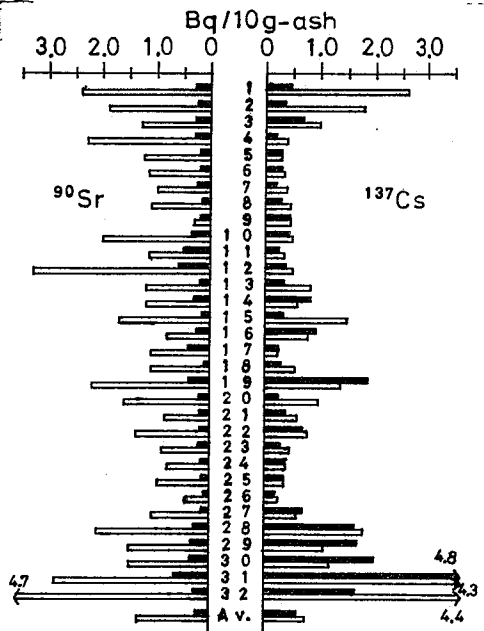


第2図 試料採取地

- | | |
|--------|--------|
| 1 稚内 | 2 浜頓別 |
| 3 幌延 | 4 苫前 |
| 5 名寄 | 6 旭川 |
| 7 富良野 | 8 深川 |
| 9 札幌 | 10 積丹 |
| 11 倶知安 | 12 江差 |
| 13 函館 | 14 八雲 |
| 15 伊達 | 16 遠浅 |
| 17 浦河 | 18 大樹 |
| 19 新得 | 20 清水 |
| 21 音更 | 22 足寄 |
| 23 興部 | 24 中湧別 |
| 25 網走 | 26 北見 |
| 27 釧路 | 28 茶内 |
| 29 磯分内 | 30 計根別 |
| 31 中標津 | 32 別海 |



第3図 土壌中のU含有量と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比



第4図 牛乳および牧草中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 含有量 (■ 牛乳, □ 牧草)

(新潟大理) 橋本哲夫、高橋邦明、小柳章、木村健一
 外林武

1. 造岩鉱物のうち石英、長石などの白色鉱物は加熱することにより熱蛍光を発する。熱蛍光は放射線の電離作用によって生成された捕捉電子が、熱を加えることによって脱励起されることによっておこり、天然試料の熱蛍光量を測定することにより、重要な年代を測定することができる。また、年代以外に鉱物の産地、熱履歴や放射線源としてのU、Thなどの系列内核種の放射平衡に関する情報も得られよう。前回の討論会において、造岩鉱物、海岸砂試料について熱蛍光現象の写真観察、ホトン計数法を用いたいくつかの結果を報告してきた。しかし、前回用いた半田ゴテを改造した加熱装置では高温側(約300℃~400℃)においては必ずしも昇温速度が一定でなく、補正がめんどろであった。Randall-Wilkinsの熱蛍光理論¹⁾によると温度Tにおける熱蛍光強度I(T)は

$$I(T) = n_0 \cdot C \cdot s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[\exp\left\{-\int_{T_0}^T \frac{s}{B} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT\right\} \right] \quad (1)$$

で表わされる。ここで、 n_0 は温度 T_0 のときの捕捉電子数、 s は振動因子、 k はボルツマン定数、 E は電子の捕捉位置の伝導帯下の深さである。また、 B は dT/dt で表わされる昇温速度である。(1)式から温度Tにおける熱蛍光出力I(T)は昇温速度Bに依存しており、グローカーブを解析するためにはBを一定に保つことが重要であることがわかる。そこで演者らは交流の位相制御を用いた一定昇温速度の加熱装置の製作を行ない²⁾、この加熱装置とホトン計数装置を組み合わせ、造岩鉱物の熱蛍光測定を行ない基礎的条件を検討したので以下に報告する。

2. 微弱熱蛍光も正確に測定するために、ノイズ出力と信号出力を分離でき、光電子増倍管を冷却することにより、暗電流によるノイズを無視しうる程に減少させるホトン計数装置を用いた。ホトン計数装置からのデータ処理及び温度測定と温度制御を同時に行なうためマイコンを使った。図1に自作のホトン計数-マイコンシステムのブロック図を示す。加熱装置は、加熱体に26Wセラミックヒーターを4本たばねたものを使用し、これを熱伝導性の良いAg箔で包み試料皿とした。温度制御は加熱体に供給する交流100Vをマイコンで位相制御することにより、行なうこととした。制御の方法はTRIAC(トライアック)

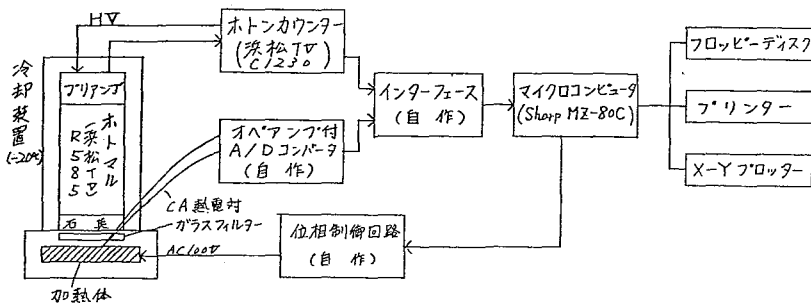


図1. ホトン計数-マイコンシステム

はしもとてつを、たかはしくにあき、こやなどおきろ、きむらけんいち、
 そとばやしだけし

を用いて交流の両相を制御するもので、交流の半波を時間に関して250に分割し、 $n=1\sim 250$ の数値をマイコンから制御回路に出力すると半波の n 番目以降が加熱体に供給されるようになってくる。これにより加熱体に供給する電力を0から全波まで250段階に変化させることができる。(尚、制御回路及びホトン計数-マイコンシステムの詳細については、ポスターセッションで増村が述べている。)

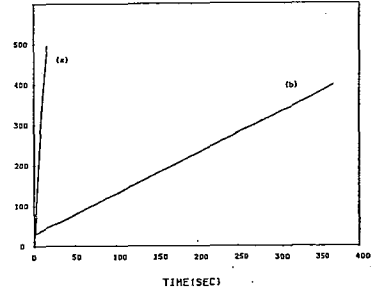


図2. 加熱体の昇温傾向

3. 位相制御を用いた結果、最大出力では約400℃まで13秒程度でほぼ直線的に上昇しており、この範囲内での昇温速度は27℃/secで、再現性も良かった。(図2参照)この昇温速度を用いて、 ^{60}Co のγ線を照射($10^3\sim 10^7\text{R}$)したアニール済み石英、微斜長石(100~200 mesh)を各5mgとり、熱蛍光測定を行なった。 10^5 , 10^6 , 10^7R 照射した石英のグローカーブを図3に示す。石英については $10^3\sim 10^5\text{R}$ 照射した試料のグローカーブの形に変化は見られないが、 $10^5\sim 10^7\text{R}$ では形が大きく変化した。(図3参照)これは、 10^5R までは電離された電子が200℃ピークを現す捕捉位置に優先的に捕捉されるが、 10^6R 以上では350℃ピークに捕捉されるためと思われる。そして、50~400℃の範囲での積分熱蛍光量を線量に対してプロットした結果、明らかに 10^5R 以上でsupralinearityが見られた。しかし、微斜長石に関しては線量によるグローカーブの形の変化もsupralinearityも見られなかった。この事から、熱蛍光を測定することにより放射線損傷過程に関する情報を得る可能性が得られた。次に、BASICによる制御プログラムで1℃/secの昇温速度に調整した加熱装置を(図2参照)を用いて 10^5R 照射した石英について熱蛍光測定し、得られたグローカーブを27℃/secの昇温速度で得られたグローカーブと共に図4に示す。図4から昇温速度を大きくするとピーク位置の温度が高温側に移動し、ピークでの熱蛍光量も高くなることがわかった。

(a) 27℃/sec. (b) 1℃/sec.

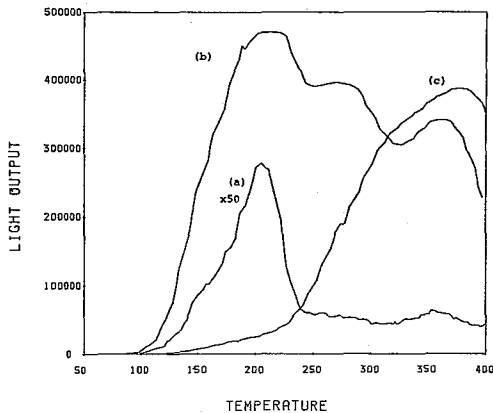


図3. 照射線量の違いによるグローカーブの変化. (a) 10^5R (b) 10^6R (c) 10^7R 昇温速度 27℃/sec.

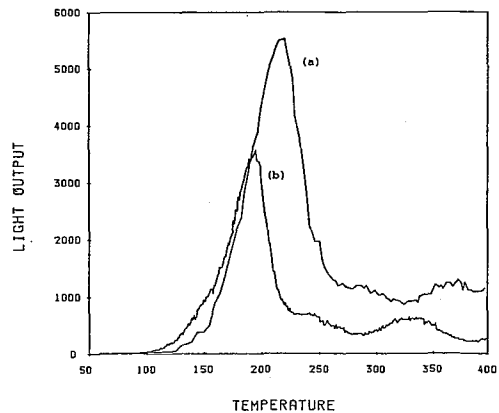


図4. 昇温速度の違いによるグローカーブの変動. (a) 27℃/sec. (b) 1℃/sec. 10^5R 照射石英試料

1. Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F., 1945. Proc. Roy. Soc. A184, 366-89
2. 橋本哲夫、高橋邦明、外林武：近畿大学原子炉共同利用研究経過報告書, 53(1982)

融雪残渣に含まれる粒子状核分裂性物質の新検出法と
その特性について

(新潟大理) 橋本哲夫、○青柳義昭、高橋 斉、外林 武

1. 大気圏内での過去の核実験や、いくつかの人工衛星の大気圏突入にともなう積載原子炉の焼失などにより、微粒子として大気中に浮遊している残留核分裂性核種が、今日なおフォールアウトとして落下している可能性がある。核実験直後においては、強い核分裂生成物による放射能のため、粒子状放射性物質(以下GP(Giant Particle)と略記)として検出出来るが、長時間経ると、GPの検出はこれまで困難であった。GP自身、Puのホットパーティクル論争と関連し、また環境試料中の α 、Puの定量の再現性を乱すため、古いGPの新検出法の開発が望まれていた。演者らは、1976年10月26日のオ19回中国核実験の際に、実際にいくつかのGP粒子を捕集単離し、白雲母板でサンドウィッチ状にはさみこんだ状態で、原子炉中性子照射後、誘導フィッシュントラック(以下Fiss.Trと記す)を観察したところ、GP中に残存する高濃度の核分裂性核種に由来する特徴的な放射状トラックを見出した。その後、この放射状Fiss.Tr数の計数から、粒子に含まれる、核分裂性核種量も見積ることが可能となった。そこで、反対に、誘導放射状Fiss.Trから、降雪中のGP量を求めることも確認し、現在ではGPとして区別出来ない粒子から、GPを検出する新方法を提案したことになる。

ここでは、この新方法を用い、融雪残渣中に存在するGP量の検出を行なうとともに、GPの性質を調べるため、電磁、重液分離を施し、GP検出を各分画について行なった結果、興味ある結果が得られたので、以下報告する。

2. 試料は、地上物質のまいりによる混入が少ないと思われる、融雪残渣を、1981年3月29日、新潟県新井市にて集めて使用した。残渣を風乾後、図1に示すように、2分し、一方は重液分離(プロモホルム+15%エタノール、比重:2.615~2.641、以下同重液使用)にかけ遠心分離後、沈殿層と浮遊層に分離した。他方は、電磁分離(横傾斜15°, 前傾斜25°, 電流6A)にかけ、磁石に付着する強磁性のもの、磁性を有するもの、反磁性のもの3通りに分け、更に各々を、上述と同様に重液分離により、重軽分画に分けた。各分画におけるGPを放射状Fiss.Trとして検出定量するために、検出材として白雲母板を用い、5mm径を有する10×10mm形状で厚さ1.5mmのポリエチレン板をはりつけ、この穴の中へ、各分画の残渣を充填し、もう1枚の白雲母ではさんで、全体をパラフィルム包装し固定した。各試料をポリエチ袋に封入し、原子炉中性子照射した。照射は、武蔵工大原子炉のFリングを用い5時間(全熱中性子フルエンス: $2.7 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$)行ない、約6ヶ月間冷却のあと各自雲母について、

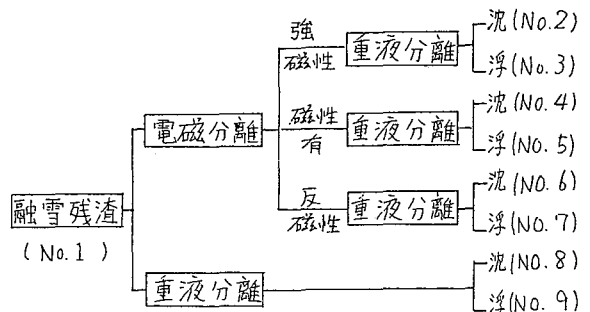


図1. 融雪残渣試料の電磁および重液分離

はしもとてつを・あおやぎよしあき・たかはしつよし・そとばやしただけし

H Fによるエッチング処理を行ない、生成したFiss.Trの観察を、光学顕微鏡で行なった。

3. 試料No.2と3から得た、Fiss.Tr.パターンを、図2に示す。GP中に残留する核分裂性核種に由来するFiss.Tr.は、GPに中心を有する特徴的な放射状トラックパターンを示しており、ほぼ均一分布を有する土壌由来と思われる均一Fiss.Tr.からは、は、きりと区別することが出来る。Fiss.Tr.の飛程に比して無限厚みを有する個所の、放射状Fiss.Tr.数の密度は、各分画におけるGP粒子濃度と関連しており、放射状Fiss.Tr.のトラック数そのものは、GP当りに含まれる核分裂性核種量と粒子の大きさに密接に関連しており、図2からも明らかのように、重液分離の結果沈殿した分画からは浮かぶ層に比較して、高密度の放射状Fiss.Tr.数を得た。

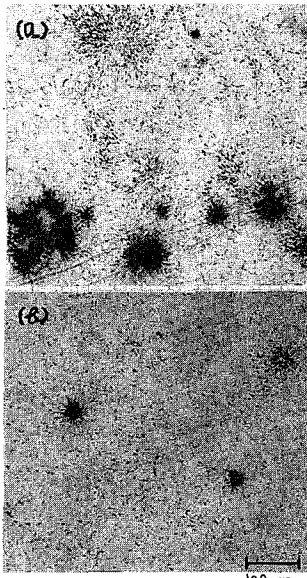


図2. 試料からの誘導フissionトラックパターン
(a) No.2 (b) No.3

他の分画についても、顕微鏡下で、GP由来の放射状Fiss.Tr.密度を観測し、表1にまとめておいた。この密度と、用いた重液の比重からの重軽両層の仮定密度(それぞれ $3.0, 2.6 \text{ g/cm}^3$ 使用)から単位質量当りのGP濃度を見積り表1に記した。この結果、明らかに、重い分画に2~4倍のGP濃縮が生じており、大部分のGPは、その密度が2.7以上であることが判明した。残渣重量を考慮することにより、総GP数を各分画について求めうるので、その結果をもとに、各分画中に存在するGP数の割合を見積りしてみた。結果として、電磁分離からの、強磁性分画には、50%以上のGPが存在しており、磁性あり分画を含めると、85%にも相当するGP数になる。このことは、GP自身、核実験の際に、核弾頭を包みこむ容器が磁性を有する鉄を主成分とすることを示唆する。また強磁性の分画ほど、かつ重い分画ほどGP当りのトラック数は多く、高濃度核分裂性核種含量かつ粒子が大きいことがこの実験から観察された。No.1試料につきU.Puを化学的に分離し、誘導Fiss.Tr.密度を測定したところ、U成分に、30倍以上のトラックが存在しており、GP中に高濃度のUが残留している可能性が示唆された。また各分画に含まれる長寿命核分裂生成物(^{137}Cs 等)の検出も行なっている。

表1. 融雪残渣からの各分画中の放射状トラック密度とGP数の実験結果

| 試料No. | 重量(g) | 放射状トラック密度(cm^{-2}) | 単位質量当りのGP数(g^{-1}) | 総GP数 | 試料採取日 26.March, 1981(新井市) | |
|-------|-------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------|---------------------------|-----------------------|
| | | | | | No.1に規格化したGP数の割合 | 電磁分離・重液分離での各分画のGP数の割合 |
| 1 | 4.6 | 7.95×10^2 | 3.01×10^6 | 13.8×10^6 | 1.00 | |
| 2 | 0.31 | 1.63×10^3 | 5.47×10^6 | 1.71×10^6 | 0.12 | 0.16 |
| 3 | 1.02 | 9.52×10^2 | 3.61×10^6 | 3.68×10^6 | 0.26 | 0.35 |
| 4 | 0.28 | 2.30×10^3 | 7.68×10^6 | 2.13×10^6 | 0.15 | 0.20 |
| 5 | 0.68 | 5.83×10^2 | 2.21×10^6 | 1.51×10^6 | 0.11 | 0.14 |
| 6 | 0.11 | 2.31×10^3 | 7.71×10^6 | 0.87×10^6 | 0.06 | 0.08 |
| 7 | 0.26 | 6.14×10^2 | 2.33×10^6 | 0.60×10^6 | 0.04 | 0.06 |
| 8 | 0.27 | 1.69×10^3 | 5.64×10^6 | 1.53×10^6 | 0.11 | 0.61 |
| 9 | 0.56 | 4.56×10^2 | 1.73×10^6 | 0.97×10^6 | 0.07 | 0.39 |

電磁分離

重液分離

九州環境管理協会 ○松岡信明 平井英治
九州大学 理学部 百島則幸 高島良正

1. 目的

松葉が放射性物質をよく濃縮することは既によく知られた事実であり、最近では原子力発電所周辺のモニタリング指標としてよく利用されている。ところが一方、モニタリングの一環としてクロスチェックを行ってみると分析機関によって異なった測定値が得られることもしばしばある。演者らはこの原因が採取の方法にあると考え今回の実験を行った。すなわち、松葉には若い1年葉と古い2年葉、時としてさらに古い3年葉があり、それぞれの葉によってフォールアウト等の濃縮の様子が違うことが考えられる。従って同じ場所で採取した松葉でも採り方次第で内容が変わる。また百島らによれば葉鞘部(ヘタの部分)に放射性物質がよく濃縮されることがわかっているが、採取の方法によっては葉鞘部の取り込み量に差が出る。このことによっても異なった測定値が得られる可能性がある。

本研究では毎月同一地点において、1年葉と2年葉を別々に採取して放射能濃度の比較を行った。また葉鞘部とそれ以外の部分の比較も試みた。さらに降下物及び空気中粒子の放射能も参考として測定した。

2. 方法

松葉は福岡市東区の同一地点で毎月採取した。1年葉及び2年葉をそれぞれ100~200g採取し、そのまま110°Cで乾燥した。次に電気炉中450°Cで灰化し、灰分(1~2g)を圧縮器で直径1 inch, 厚さ1~2 mmのディスク状に圧縮して測定試料とした。特に灰分が多い時は直径2 inchのディスクとした。

降下物は、月間の雨水をタンクに捕集し、不溶物をろ紙で除いた溶液についてリンモリブデン酸アンモニウム-硫化コバルト共沈法によって放射性物質を集めた。不溶物はろ紙ごと450°Cで灰化した後、沈殿と合わせて測定試料とした。

空気中粒子はガラスファイバーろ紙上に、エアサンプラー(500L/min.)で3~4日間捕集した後、塩酸-硝酸混液で浸出して水で希釈したものを測定試料とした。

放射能の測定は4096ch波高分析器を装備したGe(Li)半導体検出器で行った。

3. 結果

表1に2年葉(1981年10月採取)における葉鞘部とそれ以外の部分の放射性物質濃度と重量の割合を示した。また表2に同じ試料の葉鞘部とそれ以外の部分の放射能含量(%)を示した。これから判断すると ${}^7\text{Be}$ や ${}^{137}\text{Cs}$ 等は約70%が葉鞘部に濃縮していることがわかる。一方 ${}^{40}\text{K}$ は葉全体に均一に分布しているものと考えられる。同様の結果が1年葉の測定についても得られた。演者らはこれを、 ${}^7\text{Be}$ や ${}^{137}\text{Cs}$ はほとんどが葉によって吸収され、 ${}^{40}\text{K}$ は根によって吸収されるためであると考えた。 ${}^{137}\text{Cs}$ は葉による吸収と根による吸収があると思われるが、葉によって吸収されたものの70%、根によって吸収されたものの5%が葉鞘部に濃縮されていると仮定するならば、1981年10月における2年葉の ${}^{137}\text{Cs}$ は

まつおかのぶあき・ひらいえいじ
ももしまのりゆき・たかしまよしまさ

約70%が葉によって吸収されたものであると推定できる。このことは、フォールアウトの影響を受けていない1年葉の ^{137}Cs 濃度が6~17 pCi/kg生程度であることとも一致する。 ^{90}Zr または ^{95}Nb に同様の考え方をあてはめると、根からの吸収が圧倒的に多いことになるが、事実と一致しているかどうかは不明である。

表1. 葉鞘部とそれ以外の部分の放射能濃度(1981年10月採取2年葉, pCi/kg生)

| | ^7Be | ^{144}Ce | ^{137}Cs | ^{95}Zr | ^{95}Nb | ^{54}Mn | ^{125}Sb | ^{40}K | 重量(%) |
|-------|---------------|-------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-----------------|-------|
| 葉鞘部 | 49930 | 26760 | 1790 | 860 | 4200 | — | — | 62 | 1.6 |
| 葉鞘部以外 | 448 | 169 | 27 | 90 | 153 | 9 | 45 | 2187 | 98.4 |

表2. 葉鞘部とそれ以外の部分の放射能含量(1981年10月採取2年葉, %)

| | ^7Be | ^{144}Ce | ^{137}Cs | ^{95}Zr | ^{95}Nb | ^{54}Mn | ^{125}Sb | ^{40}K |
|-------|---------------|-------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-----------------|
| 葉鞘部 | 64 | 72 | 52 | 13 | 30 | — | — | 5 |
| 葉鞘部以外 | 36 | 28 | 48 | 87 | 70 | 100 | 100 | 95 |

表3に1年葉と2年葉における放射能濃度の経月変化を示した。1980年10月の中国の核実験による空气中粒子への影響は1981年6月頃まで続きその後急激に減少しているが、2年葉はその影響をよく反映している。1年葉は、6月以降に成長を始めたものであり放射能の濃度も数段低い。1981年11, 12月頃1年葉の核実験起因の放射能濃度がやや高くなっており、同時に、 ^7Be と ^{40}K の濃度が他の時期に比べて2倍程度になった。フォールアウト量の増加または生体の活性化等が原因として考えられるが、はっきりしない。

表3. 1年葉と2年葉の放射能濃度の経月変化(単位 pCi/kg生)

| 核種 | 1981年 | | | | 1982年 | | | | |
|-------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| | 9月 | 10月 | 11月 | 12月 | 1月 | 2月 | 3月 | 4月 | 5月 |
| ^7Be | 381.5 713.5 | 625.0 1244.0 | 1146.6 1358.2 | 1944.7 1219.2 | 2549.0 944.9 | 1065.0 900.3 | 971.4 715.9 | 1192.3 824.1 | 1065.0 1067.0 |
| ^{144}Ce | 89.2 548.4 | 143.0 596.9 | 112.1 505.8 | 188.8 404.2 | 127.3 301.2 | 113.4 321.8 | 111.6 215.0 | 107.5 212.8 | 85.1 227.8 |
| ^{137}Cs | 16.8 27.0 | 6.5 55.6 | 12.4 57.1 | 13.6 32.3 | 12.5 16.0 | 7.1 29.2 | 11.0 24.0 | 13.2 22.9 | 22.5 |
| ^{125}Sb | 47.2 | 43.9 | 15.9 54.2 | 44.2 | 33.7 | 55.2 | | 22.5 | 25.7 |
| ^{54}Mn | 19.7 | 9.1 | 4.3 8.7 | 18.3 | 14.1 | | | | |
| ^{106}Ru | 33.7 | | 63.3 | | | | | 31.2 | |
| ^{103}Ru | 5.4 | | | | | | | | |
| ^{95}Zr | 13.7 138.0 | 102.8 | 12.5 60.8 | | 23.1 | | 16.6 | 8.8 | |
| ^{95}Nb | 24.6 268.8 | 18.1 218.7 | 29.6 146.9 | 27.1 266.6 | 28.2 44.5 | 11.8 27.4 | 18.3 | 14.7 | 12.0 |
| ^{40}K | 2118.0 2214.0 | 2348.0 2153.0 | 2598.0 2534.0 | 3114.0 2373.0 | 4073.0 2599.0 | 2041.0 2198.0 | 1883.0 1900.0 | 1505.0 1726.0 | 2603.0 2277.0 |

上段: 1年葉
下段: 2年葉

今回の研究で、1年葉と2年葉は明らかに区別して考えなければならないことと、ある核種については葉鞘部の影響は想像以上に大きいことがわかった。従ってモニタリングに際してクロスチェックを行う時は、この2点を考慮しなければならない。討論会では6月以降の測定値もあわせて報告する予定である。

- 文献 1) 百島・高島、第23回放射化学討論会予稿集 p60, 1808 (豊中, 1979)
2) 百島・古本・高島、第25回放射化学討論会予稿集 p198, 3A05 (筑波, 1981)

環境中に存在する放射性核種の定量(8)

中国核実験により生成された中性子誘導放射性核種

○小島貞男(名大アソシエーター), 古川路明(名大理)

1 環境中に存在する放射能に関連した問題の重要性は近年ますます増している。我々は1973年以来種々の環境試料中の放射性核種の定量を続けてきているが、99%の試料から核分裂生成物とともに ^{55}Fe , ^{54}Mn , ^{89}Y , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co などの中性子誘導放射性核種を検出している。これらの多くは生体に重要な元素であり、放射線影響の面から興味を持たれる。今回は1976年以降の中国核実験により生成された誘導放射性核種について大気浮遊じん試料の測定結果にもとづき報告する。

2 試料の採取は名古屋大学理学部A館屋上においておこなひ、採取装置としてハイポリューム・エア・サンプラーを用いた。フィルターはグラスファイバー濾紙を使用し、1~3日間にわたり1500~4000 m^3 の大気を通した。Ge(Li)半導体検出器により線スペクトロメトリーをおこなひ、後に、メガトン級の熱核実験がおこなわれた時の試料については ^{55}Fe の測定を試みた。溶媒抽出法および陰イオン交換法により分離精製した鉄の塩化物にリン酸を加えた後に乳化シンチレーターを加え、液体シンチレーションカウンターにより ^{55}Fe の放射線計測をおこなひた。

3 検出定量した核種をTable 1に示した。測定結果は試料採取時の放射能濃度で表わしてあり、 ^{144}Ce と ^{137}Cs も加えてある。中国の大気圏内核実験は1976年9月26日(19回), 1976年11月17日(21回), 1977年9月17日(22回), 1978年3月15日(23回), 1978年12月14日(25回)および1980年10月17日(26回)におこなわれた。Table 2には誘導放射性核種と ^{144}Ce との原子数比を核実験のおこなわれた日に換算し示した。 ^{54}Mn は測定を試みた試料のすべてから検出された。21回と26回はメガトン級の熱核実験であり、 ^{54}Mn , ^{55}Fe と ^{89}Y が検出されている。それぞれの生成核反応は $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$, $^{56}\text{Fe}(n,2n)^{55}\text{Fe}$, $^{89}\text{Y}(n,2n)^{89}\text{Y}$ と推定されFeおよびYが爆弾の材料に使用されていることがわかる。また核分裂中性子による核反応では $^{54}\text{Mn}/^{55}\text{Fe}$ の原子数比は80であり、T-D反応の速中性子による核反応では0.05であることから、21回と26回の核実験では速中性子の寄与が大きい。19回は数百キロトン級、22回と23回は数十キロトン級の核実験であり、 ^{57}Co と ^{58}Co が検出されている。生成核反応は $^{58}\text{Ni}(n,pn)^{57}\text{Co}$, $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$, $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ と推定され、Niが爆弾材料中に含まれている。また23回核実験により生成された誘導放射性核種として ^{124}Sb (半減期60d)が検出されている。生成核反応は $^{123}\text{Sb}(n,\nu)^{124}\text{Sb}$ と推定され、熱中性子の捕獲反応がおきたと考えられる。従って ^{60}Co の生成については $^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$ 反応だけでなく、 $^{59}\text{Co}(n,\nu)^{60}\text{Co}$ 反応が寄与していると思われる。以上みてきたように中国核実験により生成された誘導放射性核種の種類は核実験の規模に依存しているが、 ^{54}Mn のように核実験の規模によらず検出される核種もある。 ^{55}Fe も同様に小規模な核実験でも検出される可能性があり、測定をおこなひ、この試料についても測定を継続する予定である。

こじま さだお, 小島 貞男, 古川 路明

Table 1 大気浮遊じん中の中性子誘導放射性核種濃度 (pCi/1000m³)

| Sampling time | ⁵⁷ Co (272d) | ⁵⁸ Co (71d) | ⁶⁰ Co (5.3y) | ⁵⁴ Mn (312d) | ⁵⁵ Fe (2.7y) | ⁸⁸ Y (107d) | ¹⁴⁴ Ce (285d) | ¹³⁷ Cs (30y) |
|----------------|----------------------------|---------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|---------------------------|-----------------------------|----------------------------|
| Oct. 1, 1976 | - | 3.0(.5) | - | 0.8(.2) | - | - | 64(6) | 2.4(1.2) |
| Oct. 23, 1976 | 0.38(.10) | 8.4(1.0) | - | 1.2(.2) | - | - | 54(2) | 2.2(.4) |
| May 9, 1977 | - | - | - | 0.5(.2) | - | 0.7(.2) | 58(1) | 4.6(.4) |
| May 24, 1977 | - | - | - | 0.7(.1) | - | 0.5(.3) | 84(2) | 5.4(.4) |
| May 15, 1978 | - | - | - | 0.9(.1) | - | - | 90(1) | 11.1(.3) |
| Jun. 30, 1978 | - | - | - | 0.3(.1) | 3.2(.3) | - | 42(1) | 6.7(.2) |
| Sep. 24, 1977 | 0.70(.10) | 17.3(1.2) | - | 2.3(.2) | - | - | 146(3) | 7.1(.5) |
| Sep. 28, 1977 | 1.67(.35) | 27.6(2.1) | 1.3(.5) | 3.7(.8) | - | - | 167(4) | 12.8(1.1) |
| Mar. 21, 1978* | 0.86(.05) | 5.4(.3) | 0.5(.1) | 3.6(1.3) | - | - | 49(14) | 3.2(1.5) |
| Apr. 5, 1980 | - | - | - | 2.0(.1) | 7.1(.2) | 0.9(.1) | 71(1) | 3.8(.1) |
| Apr. 25, 1980 | - | - | - | 2.6(.1) | 8.6(.4) | 0.8(.1) | 89(1) | 6.1(.2) |

* 降下じん試料であり、試料に含まれる放射能をpCiで表した。

Table 2 誘導放射性核種と¹⁴⁴Ceとの原子数比(核実験時に換算した値)

| Sampling time | Bomb test | ⁵⁷ Co | ⁵⁸ Co | ⁶⁰ Co | ⁵⁴ Mn | ⁵⁵ Fe | ⁸⁸ Y | ¹⁴⁴ Ce | ¹³⁷ Cs |
|---------------|-----------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|-----------------|-------------------|-------------------|
| Oct. 1, 1976 | 19th | - | 1.3(.2) | - | 1.3(.3) | - | - | 100 | 145(72) |
| Oct. 23, 1976 | 19th | 0.6(.2) | 4.8(.6) | - | 2.5(.4) | - | - | 100 | 147(27) |
| May 9, 1977 | 21st | - | - | - | 1.0(.4) | - | 0.9(.3) | 100 | 200(19) |
| May 24, 1977 | 21st | - | - | - | 0.8(.2) | - | 0.5(.3) | 100 | 159(12) |
| May 15, 1978 | 21st | - | - | - | 1.0(.2) | - | - | 100 | 133(4) |
| Jun. 30, 1978 | 21st | - | - | - | 0.7(.3) | 9.6(.8) | - | 100 | 152(5) |
| Sep. 24, 1977 | 22nd | 0.45(.06) | 3.1(.2) | - | 1.7(.2) | - | - | 100 | 185(12) |
| Sep. 28, 1977 | 22nd | 0.9(.2) | 4.4(.4) | 5.2(2.1) | 2.4(.5) | - | - | 100 | 293(26) |
| Mar. 21, 1978 | 23rd | 1.7(.5) | 2.8(.8) | 7.3(2.7) | 7.9(3.6) | - | - | 100 | 250(140) |
| Apr. 5, 1980 | 26th | - | - | - | 2.9(.1) | 25.8(.7) | 1.0(.1) | 100 | 140(5) |
| Apr. 25, 1980 | 26th | - | - | - | 2.9(.1) | 23.5(1.3) | 0.7(.1) | 100 | 173(5) |

かゝ内は計数誤差にもとづく標準偏差である。

(名大理) 〇古川路明・(名大アイソトープ・センター)

小島貞男

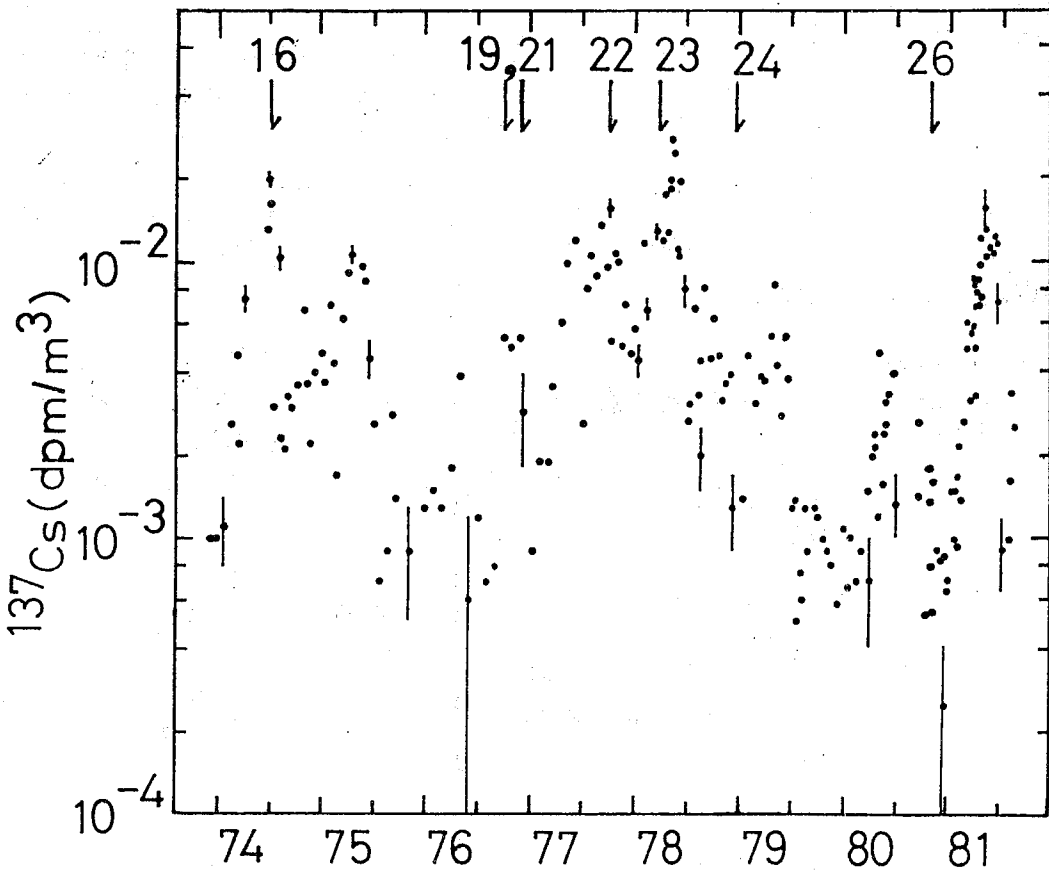
1. 大気圏内核兵器実験によって核分裂生成物以外にも多くの核反応生成物がつくられている。われわれは大気浮遊塵中から ^{58}Co , ^{57}Co , ^{59}Mn , ^{55}Fe などを検出定量したが、これらの中性子誘導放射性核種の他にも ^{59}Ni (7.5×10^4 年), ^{53}Mn (3.7×10^4 年)などの長寿命核種が生成しているはずである。その生成量は必ずしも無視できない量になり、「宇宙塵の地球上への流入量の測定」などの宇宙化学の研究に影響を及ぼす程度に達していると思われる。本報告では ^{59}Ni および ^{53}Mn の地表への降下量を他の中性子誘導放射性核種の定量値を利用して推定した結果を報告し、天然試料中の測定結果との比較について議論する。
2. 名古屋地域における ^{137}Cs の大気中の濃度はFig. 1に示す通りであり、¹⁾この間に中国による核兵器実験が6回おこなわれている。 ^{137}Cs の濃度はかなり変動しているが、必ずしも減少傾向をとっていないことがわかる。また長谷部らは東京における降下塵中の放射能濃度を1975年から1979年にわたって測定した結果を報告しているが、その時間変化もわれわれの結果とよく一致している。²⁾ $^{59}\text{Mn}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比はTable 1に示すように核実験のおこなわれた時点で0.16 ~ 0.72の範囲に入っている。 ^{53}Mn は $^{54}\text{Fe}(n, 2n)^{53}\text{Fe} \xrightarrow{\beta^+}$, $^{54}\text{Fe}(n, pn)$ の核反応で生成すると考えられるために、 ^{55}Fe の生成量を参考にして生成量が推定できる。 $^{55}\text{Fe}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比を0.7とし、 ^{137}Cs の降下量を $0.81 \text{ mCi km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ とすると、²⁾ ^{55}Fe と ^{53}Mn の生成断面積を等しいと仮定すれば、 ^{53}Mn の降下量は $1.6 \times 10^8 \text{ atoms m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ となる。放射能に換算すると $6 \times 10^{-5} \text{ dpm m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ に相当し、Bibronらが極地の氷を分析して得た降下量³⁾ $(2.2 \pm 0.5) \times 10^5 \text{ dpm m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ とほぼ一致している。この一致は宇宙塵に由来する ^{53}Mn の降下量と核兵器実験による降下量が同程度であることを示している。
3. ^{59}Ni は $^{60}\text{Ni}(n, 2n)$ 反応で生成すると考えられる。最近ではNiに由来する放射性核種は小規模の核兵器実験のおこなわれた時のみ検出されるので、年間降下量を知るのはかなり厄介である。このような核兵器実験に由来する ^{137}Cs の量を熱核実験に基く ^{137}Cs の1%と仮定し、 ^{59}Co と ^{59}Ni が同じ様な核反応で生成すると考えれば、Table 1に示す $^{59}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比0.10を利用して ^{59}Ni の降下量が計算できる。その値は $3 \times 10^5 \text{ atoms m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ (放射能として $5 \times 10^{-6} \text{ dpm m}^{-2} \text{ y}^{-1}$)となり、海底土に含まれている ^{59}Ni の量から算出した値⁴⁾ $(6 \times 10^{-4} \text{ dpm m}^{-2} \text{ y}^{-1})$ と比較すると小さいように思われるが、やはり考察の対象になる値のように思われる。1960年代には現在の約10倍の放射能濃度が観測されたことを知られているので、現在よりはるかに高い降下量が生じられる。現在1980年代の降下量についてより確からしい値を得るよう検討中である。

小島貞男 小島みさあき 小島さだお

Table 1 ^{137}Cs に対する中性子誘導放射能核種の放射能の比

| 核兵器実験 | $^{54}\text{Mn}/^{137}\text{Cs}$ | $^{55}\text{Fe}/^{137}\text{Cs}$ | $^{57}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ |
|---------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| 19回 (~10 ² kt) | 0.31 ± 0.09 | | 0.16 ± 0.07 |
| 21回 (~3 Mt) | 0.18 ± 0.05 | 0.7 ± 0.1 | — |
| 22回 (~10 kt) | 0.30 ± 0.06 | | 0.12 ± 0.04 |
| 23回 (~10 kt) | — | | 0.28 ± 0.10 |
| 26回 (~1 Mt) | 0.73 ± 0.10 | 1.9 ± 0.2 | — |

Fig. 1 大気中における ^{137}Cs 濃度の時間変化

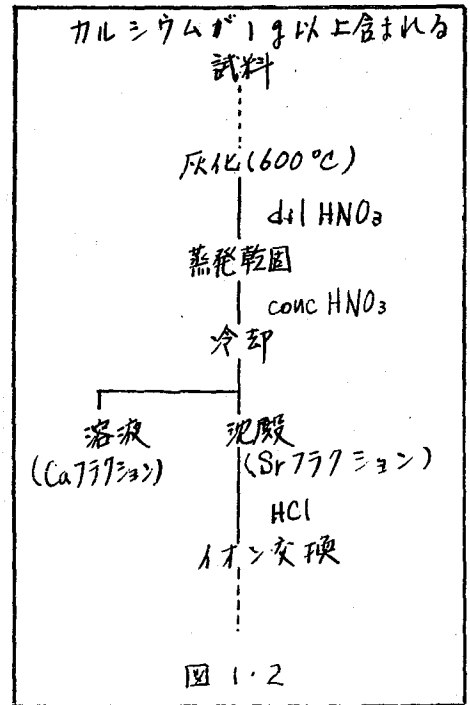
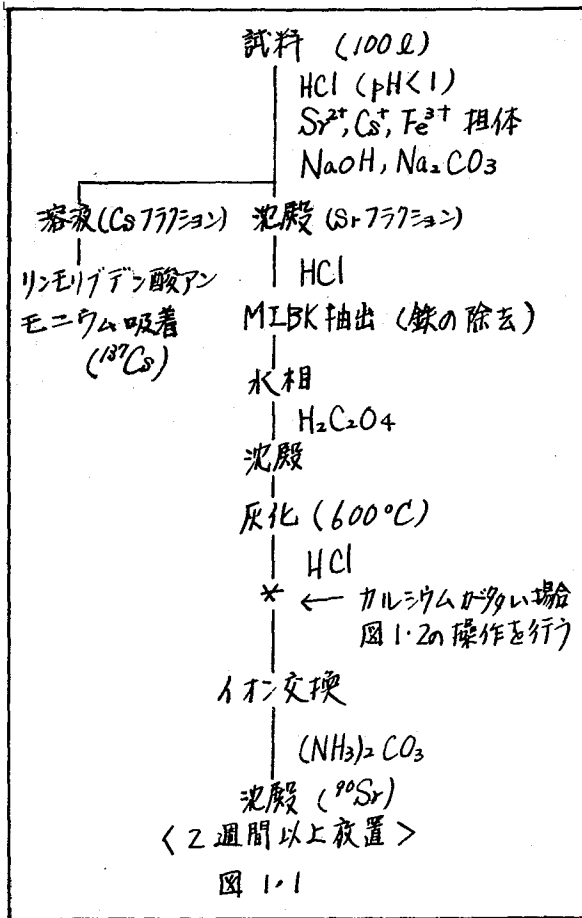


- 1) 佐藤, 古川, 小島 第25回放射化学討論会要旨集 p. 194 (1981. 10)
- 2) N. Hasebe, T. Doke, J. Kikuchi, Y. Takeuchi, J. Geophys. Res. 86 A2 p. 520 (1981). 長谷部, 高野, 竹内, 菊池, 道家 早稲田大学理工研報告第92輯 p. 91 (1980).
- 3) R. Bibron, R. Chesselet, G. Crozza, G. Leger, J. P. Mennessier, E. Picciotto, Earth Planet. Sci. Lett. 21 109 (1974).
- 4) K. Yamakoshi, S. Yanagita, Earth Planet. Sci. Lett. 52 259 (1981).

(青学大理工) 木村幹 平尾良光 ○斎藤裕子 山口謙二
 渋谷英俊

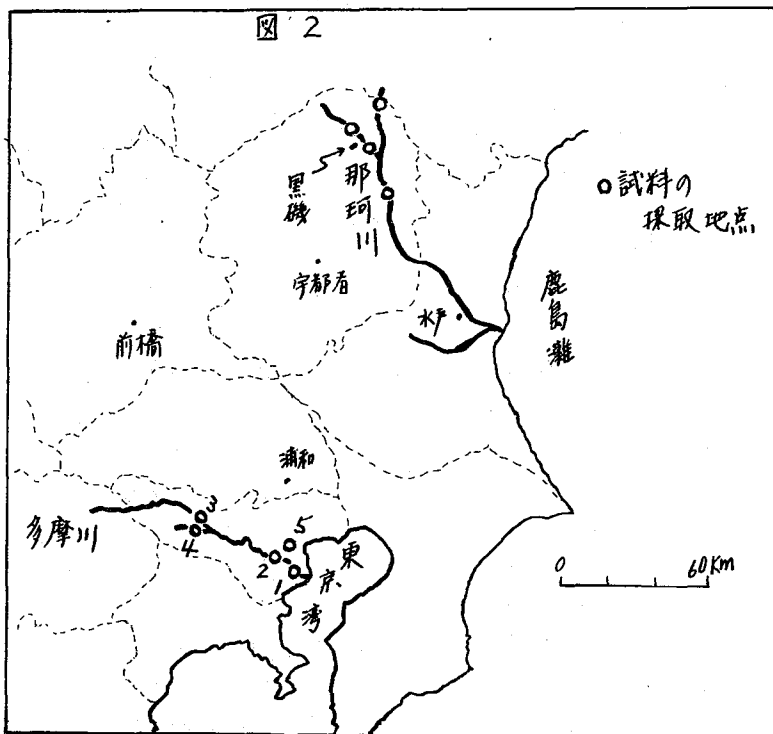
序論) 関東平野の水圏における放射性汚染の現況を調べるため、河川として多摩川および那珂川を選び ^{90}Sr と ^{137}Cs を定量した。なお試料として若干雨水と東京湾の海水を加えた。 ^{90}Sr の分離・精製には主に放射能測定法規準化委員会のイオン交換法を用い、 ^{137}Cs の分離・精製にはリンモリブデン酸アンモニウム吸着法を用いて行い、同一試料からこの2核種を系統的に分離した。またストロンチウムの分離においては、カルシウム含量の多い試料の場合、イオン交換分離の前に、カルシウムヒストロンチウムの粗分離を行うなどの検討を加えている。

分析法) ^{90}Sr と ^{137}Cs の分析法を図1.1に示す。またカルシウムが多い試料の場合のストロンチウムとの粗分離の方法を図1.2に示す。



きむらがん・ひらおよしみつ・さいとうゆうこ・やまぐちけんじ・しばやひでとし

試料の採取) 河川系の試料として多摩川および那珂川の河川水を採取した。試料の採取地点を図2に示す。



結果) 結果の一部を下に示す。河川水1~4は図2で示した多摩川で採取した試料である。

| 試料 | ^{90}Sr (pCi/kg) | ^{137}Cs (pCi/kg) |
|--------------------|---------------------------|----------------------------|
| 河川 1 丸子 | 0.046 ± 0.006 | 0.015 ± 0.006 |
| 川 2 登戸 | 0.048 ± 0.006 | 0.008 ± 0.006 |
| 水 3 牛浜 | 0.023 ± 0.007 | N. D. |
| 4 高月 | 0.030 ± 0.007 | N. D. |
| 雪 5 世田谷 (青学大理工) | 0.044 ± 0.006 | 0.054 ± 0.005 |

試料として、河川水および雨水100ℓ、海水20ℓについて ^{90}Sr と ^{137}Cs を系統的に分離することができた。そして定量結果から関東平野における河川水、海水、雨水中の ^{90}Sr および ^{137}Cs について考察する。

(新潟県公害研) ○殿内重政 丸田文之 南 忠員

柏崎・刈羽地域に1985年10月原子力発電所が運用予定であるので、そのための事前調査を行っている。今回は1980~1981年度に採取した試料中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs分析結果について報告する。

試料としては農畜海産物(原乳, 牧草, 大根根部, 葉部, カレイ, アオサ, ホンダワラ類, 精米), 松葉, 陸土, 海底堆積物を用いた。試料の採取, 分析法等は科学技術庁編「放射性ストロンチウム分析法」, 「放射性セシウム分析法」に準じて行った。

結果と考察)

新潟市の雨水ちり中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs降下量は1980年度ではそれぞれ0.017, 0.027mCi/km²であり, ¹³⁷Cs/⁹⁰Srは1.6であった。原乳中の⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの年間平均値は1980年度はそれぞれ1.6, 2.7 pCi/l, 1981年度は1.6, 4.0 pCi/lであった。牧草については採取時期により異った値を示していたが⁹⁰Srについては, その比放射能(⁹⁰Sr/Sr)は同じ年度では同程度の値であった。大根根部と葉部では生重量あたりの⁹⁰Srと¹³⁷Cs放射能濃度は葉部の方が高い値であったが⁹⁰Srの比放射能については同一試料の根部と葉部では同程度の値であった。¹³⁷Cs/⁹⁰Srは1980年度分の根部で0.26~0.68, 葉部では0.25~0.91でありいずれも⁹⁰Srの方が高い値であった。精米中の⁹⁰Srに関しては地点間のばらつきは少なかったが¹³⁷Csはかなりばらついていた。海産物についてはいずれも農産物よりも低い放射能濃度であり、特にカレイ中の⁹⁰Srは検出限界以下であった。指標植物としての松葉は黒松の2年葉を使用した¹³⁷Csに関しては8~83 pCi/kgとかなりばらついていた。⁹⁰Srは260~560 pCi/kgの範囲で, その比放射能については24~31 pCi/mgとかなり一定の値を示していた。陸土については上層(0~5cm)の方が下層(5~20cm)の放射能濃度より低かったが, これは表層には砂質分が多く, 下層には粘土質が多かったためと推定された。海底堆積物については⁹⁰SrはLTD

表-1 1980年、1981年度の柏崎・刈羽地域の農畜海産物による内部被ばく線量の推定値

| 年 度 | 種 類 | ⁹⁰ Sr mrem/年 | ¹³⁷ Cs mrem/年 | 合計 mrem/年 |
|------------|----------------|----------------------------|-----------------------------|--------------|
| 1980 年度 | 葉 菜 | 2.85 | 0.042 | 2.89 |
| | 牛 乳 | 0.21 | 0.008 | 0.22 |
| | 魚 類 | 0.040 | 0.017 | 0.06 |
| | 海 藻 | 0.034 | 0.001 | 0.04 |
| | 合 計 | 3.13 | 0.068 | 3.21 |
| 1981 年度 | 葉 菜 | 3.24 | 0.034 | 3.27 |
| | 牛 乳 | 0.207 | 0.012 | 0.219 |
| | 魚 類 | 0.039 | 0.010 | 0.049 |
| | 海 藻 | 0.034 | 0.002 | 0.036 |
| | 精 米 | 0.137 | 0.015 | 0.152 |
| 合 計 | 3.66 (3.52) | 0.073 (0.058) | 3.72 (3.57) | |

() 内は、精米を除いた合計

~11 pCi/kg乾 で分析した試料の半分が検出限界以下であった。¹³⁷Csに関しては粘土質分が砂質分の試料に比へ10倍程度高い値であった。食品中の⁹⁰Srと¹³⁷Csによる内部被ばく線量の推定を「環境放射線モニタリングに関する指針」に基づき行ったところ1980年度では3.2mrem/年, 1981年度では3.6mrem/年と同程度の値であり(表-1), これをTLDによる年間線量の値(1980年度:65.2mR, 1981年度:65.7mR)と比べると5%程度であった。

とのうちしげまさ・まるたふみゆき・みなみただかず

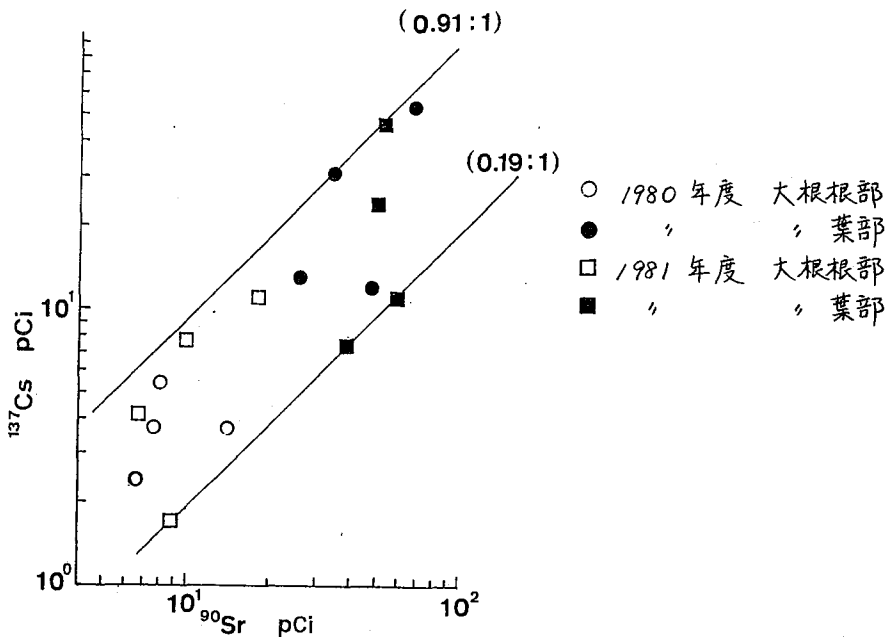


図-1 大根根部・葉部の ^{90}Sr と ^{137}Cs の相関

表-2 松葉中の ^{90}Sr , ^{137}Cs 分析結果

| 地点 | 採取年月日 | 組成 (%) | | | ^{90}Sr | | ^{137}Cs | | Sr mg/kg生 | 比放射能 $10^3 \mu\text{Ci/g}$ | Cs/Sr |
|----------------------------|-------------|--------|-------|-------|------------------|--------------|-------------------|----------------|--------------|-------------------------------|-----------------|
| | | 灰分 | Ca | K | pCi/kg生 | S.U. | pCi/kg生 | C.U. | | | |
| 柏崎市荒浜 (東電敷地内) (荒浜小腸) | 1980. 7. 15 | 1.14 | 0.167 | 0.140 | 370 ± 2 | 220 ± 1 | 100 ± 2 | 74 ± 1.4 | 8.87 | 42 | 0.27 |
| | 11. 18 | 1.37 | 0.183 | 0.244 | 400 ± 3 | 220 ± 2 | 8.0 ± 0.81 | 3.3 ± 0.33 | 12.7 | 31 | 0.020 |
| | 平均値 | | | | 390 ± 21 | 220 ± 0 | 54 ± 65 | 39 ± 50 | 11 ± 2.7 | 37 | 0.15 ± 0.18 |
| | 1981. 7. 8 | 2.27 | 0.416 | 0.248 | 560 ± 5 | 140 ± 1 | 83 ± 1.9 | 33 ± 0.7 | 22.7 | 25 | 0.15 |
| | 11. 10 | 1.34 | 0.225 | 0.253 | 260 ± 2 | 120 ± 1 | 23 ± 0.8 | 9.0 ± 0.30 | 10.8 | 24 | 0.088 |
| | 平均値 | | | | 410 ± 210 | 130 ± 14 | 53 ± 42 | 21 ± 17 | 17 ± 8.4 | 25 | 0.12 ± 0.04 |

表-3 陸土中の ^{90}Sr , ^{137}Cs 分析結果

| 地点 | 採取年月日 | 層別 | ^{90}Sr | | ^{137}Cs | | Cs/Sr |
|--------|-------------|--------|------------------|---------------------|-------------------|---------------------|----------------|
| | | | pCi/kg乾 | mCi/km ² | pCi/kg乾 | mCi/km ² | |
| 柏崎市 安田 | 1981. 7. 27 | 0~5cm | 88 ± 3.0 | 7.1 ± 0.24 | 710 ± 11 | 57 ± 0.9 | 8.07 |
| | " | 5~20cm | 300 ± 5 | 50 ± 0.8 | 820 ± 12 | 140 ± 2 | 2.73 |
| | 平均値 | | 190 ± 150 | 29 ± 30 | 770 ± 78 | 99 ± 59 | 5.4 ± 3.8 |

(金沢大理, 東京歯科大*)の中西 孝 竹井美智子* 石川篤子

【はじめに】

空中核実験によって大気圏に放出された Pu ($^{239,240}\text{Pu}$ 約400 kCi)は、大気、降水、河川水などを通じて海洋にもたらされる。このようにして海水中に入った Pu について、それがどのような存在形態にあり、短期的にどのような挙動などが観測されるかを研究することは、海洋における Pu の長期的な行方を推測する上で重要な手がかりを与えるものと考えられる。

本研究では、フォールアウト Pu が海水中でどのような存在形態と挙動を示すかを推定することを主目的として、外洋における $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直濃度分布を検討し、また、沿岸と外洋の表面海水中での粒子吸着態 Pu の全 Pu に対する割合などを検討した。

【実験】

本研究の中で $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の定量を実施した外洋の深度別海水は、東大海洋研・白鳳丸のKH-79-3次(1979年6月~8月)およびKH-82-1次(1982年1月~3月)の研究航海において、東大海洋研で開発された250 l大量採水器を用いて採取されたものである。また、沿岸海水は、東大海洋研・大槌臨海研究センターにおいて、1980年7月~8月に、大槌湾の海水を海水取水装置を用いて採取したもので、取水装置で汲上げただけの海水900 l、および取水装置に連結された密閉型海水ろ過装置でろ過された海水900 lである。採取された海水試料について、まず鉄共沈による Pu の前濃縮を行い、次いで陰イオン交換樹脂カラム法による Pu の化学分離および電着を行い、 α 線スペクトロメトリーにより $^{239,240}\text{Pu}$ を定量した。一方、外洋海水中の粒子吸着態 Pu と溶解態 Pu の分別定量などを行う目的で、KH-82-1次航海において、海水取水装置により連続的に汲上げられる表層海水を、ワットマンろ紙No. 541 (20~25 μm の粒子を保持) → 富士フィルム・マイクロフィルターの孔径の大きなものから順に通過 (5 μm → 1.2 μm → 0.22 μm)させ、さらにAmberlite XAD-2 → Dowex 1-X8 → Dowex 50W-X8の樹脂床を通過させた。フィルターと樹脂床を通過した海水に対しては鉄共沈を行い、また各フィルターと樹脂床に対しては灰化を行って、各画分中の $^{239,240}\text{Pu}$ を上述の方法で定量した。なお、一連のフィルターと樹脂床を通過する海水の流速は、フィルター孔内での粒子の破壊および樹脂と海水の接触時間などを考慮して、約4 ml min⁻¹とした。このようにして処理された海水の量は170 lである。大槌湾の海底堆積物について、 Pu (III, IV)および Pu (V, VI)の分別定量も検討したが、ここではフッ化ランタン共沈法を用いた。

【結果と考察】

1) 外洋海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布 KH-79-3航海の測点、30°00'N, 145°45'E, において測定された $^{239,240}\text{Pu}$ の深度分布を図1に示す。 $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度極大が400 mと700 mにあらわれている。同様の分布パターンではあるが、さらにシャープな濃度極大が

なかにしたかし ・ たけいみちこ ・ いしかわあつこ

KH-82-1航海の測点, $12^{\circ}00'N$, $152^{\circ}30'E$ (エニウェットク環礁の西方約1000 km)での深度分布にあらわれている。図1にみられるような濃度極大が、海水表面への $^{239,240}\text{Pu}$ 降下の極大(1956年, 1964年)に対応するものと仮定すると, 400~700 mに存在するPuは, 平均約 30 m yr^{-1} の速度で沈降したと推定できる。そして, Puは海水中の浮遊けん濁粒子に吸着して沈降していると推定される。Puを担って沈降する粒子の比重を海水の1.1倍と仮定した場合, 30 m yr^{-1} で沈降するものの粒径は約 $5\mu\text{m}$ と推算される。

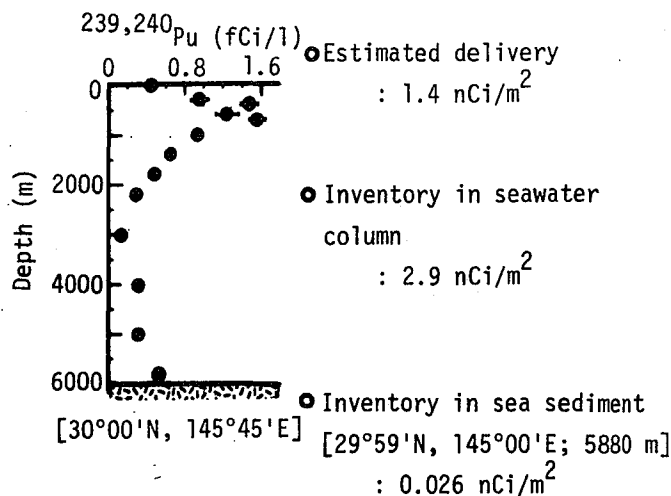


図1. 外洋における $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布の一例。この測点は, 太平洋のB点($30^{\circ}N, 147^{\circ}E$)の近くである。

2) 海水中の粒子吸着態Puの全Puに対する割合 海水中に存在するPuは, どのような割合で粒子に吸着しているかを検討した結果, まず大槌湾の海水では, 数 μm の粒子までを淨別する能力のある淨過装置を通過した海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は, 淨過しない海水のその約29%であった。粒子吸着態であっても淨過装置を通り抜けるPuが存在すると考えられるので, 大槌湾の海水中では, 少なくとも71%のPuは数 μm 以上の粒子に吸着しているということになる。一方, 外洋の表層水を4種類のフィルターと3種類の樹脂床を順次通過させて得られた海水中には, 何も通過させてない海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の85%以上の濃度が測定された。沿岸海水と外洋海水とで淨過の方法が異なるとは言え, 粒子吸着態Puの全Puに対する割合が沿岸と外洋とかなり異なっていることになる。これらの結果は, 今までに他の研究者によって報告されていることと矛盾はしないが, 沿岸海水の場合, その中に存在するPuは, 陸上ですでに土壤粒子などに吸着してしまったものが多いということや, 沿岸海水中には吸着活性の大きい粒子が多いというようなことが考えられる。そして, 外洋海水中のPuは, 粒子状物質への吸着に関して, かなりゆっくりとした速度で反応が進行しているものと推定される。

3) 沿岸海水中の粒子吸着態Puの酸化状態 大槌湾の海水において, 粒子吸着態Puの全Puに対する割合は71%以上であることを述べたが, このような粒子吸着態Puの酸化状態を, 粒子が沈降して行く先の海底堆積物中のPuの酸化状態を分別定量することにより推定してみた。その結果, 約72%のPuはPu(III,IV)であることがわかった。大槌湾海水中のPu(III,IV)はすべて粒子に吸着していると仮定すると, 大槌湾海水中のPuのうちIII価, IV価のものは約50%以上という推定になる。

本研究を実施するにあたり大変お世話になった, 東大海洋研・白鳳丸の乗組員および乗船研究者の方々, 東大海洋研・大槌臨海研究センターの方々に, 厚く感謝いたします。

(九大理) 白島則幸, ○中村恭典, 高島良正

(序論)

現在トリチウムは、過去の核実験起源のものや原子力施設より環境中へ放出されているものが、天然に生成する量をはるかにうまわれている。また将来エネルギー源として核融合開発が進むにつれて、環境中へ放出されるトリチウムはますます増加していく可能性があり、放出されたトリチウムによる人体への影響の問題も十分考慮しなければならない。そのため、現在の環境中におけるトリチウムのレベル、及び分布について知っておく必要がある。

本研究では、天然水中のトリチウム濃度の測定および生物試料、土壌試料におけるトリチウム濃度の分析を行なったので報告する。

(実験)

1. 環境試料の処理

1) 海水、河川水、降水等のすでに水の形で存在している試料は、石英製の蒸留装置を用いて完全に乾固するまで蒸留を行ない、試料とした。なお蒸留の前に不溶物を浮別して取り除いておいた。

2) 生物試料においては、トリチウムを含有水分中のものと組織結合水素中のものとに分けて取り扱った。試料は真空凍結乾燥装置(栗西通商)を用いて乾燥させた。含有水分は試料と装置の間につけたドライアイストラップにより回収した。組織結合水素は、今回製作した燃焼装置により、乾燥した試料を燃焼させ、水として回収を行なった。装置を図1に示す。燃焼装置は内径が50mm、長さ1mの石英管を主体としており両側に真ちゅう製のフランジを備えている。燃焼管後部には不完全燃焼ガスを酸化するために0.5%白金アルミナペレット触媒を詰め、燃焼を行なうときにはヒーターにより250~300℃に加熱しておく。また触媒中で酸化がおこると発熱するので、触媒部分の温度は常にチェックしておき、250~300℃に保つようにする。燃焼中、管内には N_2 と O_2 を流しているが、その流量はそれぞれフローメータで調節しており、管内に流す前にリザーバーで混合し、シリカゲルにより水分を除いている。試料はペレット状にプレス成形して、ニッケル板でつくったボートにのせて、管の前部に入れ、外部より加熱して着火させ燃焼させる。燃焼により生じた水分はドライアイスにより回収を行なう。含有水分および燃焼により生じた水ともに蒸留を行ない試料とした。

3) 土壌試料においてもトリチウムを含有水分中のものと含有有機物中のものとに分けて取り扱うことにした。含有水分は真空凍結乾燥装置により回収し、含有有機物中のものは、含有有機物を燃焼することにより生じた水として回収した。回収した水は、それぞれ蒸留を行ない試料とした。

もしまのりゆさ・なかむらやすのり・たかしまよしまさ

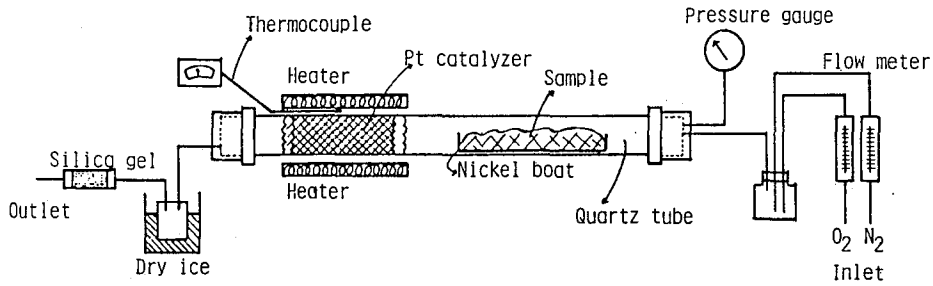


図1 燃焼装置

2. 測定

測定試料は、試料水 40 ml とドータイトシンチゾール E × H 60 ml を 100 ml のテフロンバイアルに入れ調製した。測定には低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター (Aloka LSC-L B1) を使用し、測定試料を装置中で一夜冷却したのち測定を始めた。

(結果と考察)

表1に今回得られた結果を示す。河川水のトリチウム濃度は 40~100 pCi/l の範囲であった。3つの河川によるトリチウム濃度の違いはみられなかった。上流、中流、下流で少し違いがあるようではあるが3つの河川に共通した傾向はみいだせなかった。湖水と湖底上中のトリチウム濃度にはほとんど違いがみられず、また2つの湖水では池の大きさ、流入水量、蒸発量等が違うためにトリチウム濃度に差が生じる可能性があるが、レベル的には河川水と同程度であり、明らかな差というものはいみられない。海水は 20 pCi/l 程度であり、表面海水と海底付近の海水とでは差がみられなかった。樹木の含有水分中のトリチウム濃度は葉、幹ともに河川水と同程度であり、種類による違いというものもみられなかった。しかし、組織結合水素においては葉幹ともに含有水分より明らかに高い値が得られた。

表1

| Point No. | Sample | pCi/l | Sample | pCi/l |
|-----------|------------------------|-------------|----------------------|-------------|
| 1 | Muromi River (lower) | 64.4 ± 6.7 | Inubiwa (leaf f.d.*) | 48.2 ± 5.5 |
| 2 | Muromi River (middle) | 105.6 ± 6.0 | Inubiwa (trunk f.d.) | 43.1 ± 5.9 |
| 3 | Muromi River (upper) | 67.4 ± 6.0 | Sudaji (leaf f.d.) | 56.5 ± 4.8 |
| 4 | Muromi River (upper) | 79.5 ± 5.9 | Sudaji (trunk f.d.) | 52.9 ± 6.0 |
| 5 | Naka River (upper) | 43.3 ± 6.8 | Inubiwa (leaf c.**) | 175.3 ± 7.4 |
| 6 | Naka River (middle) | 84.2 ± 6.5 | Inubiwa (trunk c.) | 91.2 ± 5.7 |
| 7 | Naka River (lower) | 49.4 ± 6.3 | Sudaji (leaf c.) | 138.4 ± 6.8 |
| 8 | Tatara River (upper) | 82.3 ± 6.3 | Sudaji (trunk c.) | 117.3 ± 6.2 |
| 9 | Tatara River (middle) | 53.3 ± 6.0 | Water Vapor | 72.5 ± 6.4 |
| 10 | Tatara River (lower) | 13.3 ± 5.3 | Soil (surface-7cm) | 34.6 ± 5.6 |
| 11 | Doi pond (water) | 73.1 ± 5.6 | Soil (7-15cm) | 62.8 ± 6.1 |
| 11 | Doi pond (sediment) | 75.6 ± 5.1 | Soil (15-25cm) | 27.6 ± 5.5 |
| 12 | Hisayama (water) | 62.0 ± 5.0 | | |
| 12 | Hisayama (sediment) | 66.2 ± 6.2 | *f.d.; freeze drying | |
| 13 | Sea water (surface) | 23.2 ± 4.9 | **c.; combustion | |
| 13 | Sea water (below 4.2m) | 24.2 ± 4.8 | | |

(九大理) ○白島則幸 高島良正
 (九州環境管理協会) 松岡信明 白石直典

気体状放射性核種は主に呼吸により体内に取り込まれ被曝をもたらす。被曝の程度を評価するうえで、存在する気体状放射性核種の濃度を知ることがまず第一である。一般大衆の気体状放射性核種による被曝を知るためには、野外大気中の放射性核種濃度を知る必要がある。この場合、対象となる核種は²²²Rn, ⁸⁵Kr, ³H, ¹⁴C等がある。当研究室では気体状放射性核種による被曝量を推定するため、各種の大気中に存在する放射性核種濃度測定法の研究を行ってきた。²²²Rnと⁸⁵Krについてはすでに報告している。^{1,2)}

今回は、残る重要な核種である、³Hと¹⁴Cの濃度を測定する方法について研究を行ったので報告する。

(実験) 本研究では、³Hは水蒸気、¹⁴Cは二酸化炭素が大部分の放射能を占めると考え、これらを対象とした。二酸化炭素と水分を同時捕集する方法としてモレキュラーシーブによる捕集法を検討した。

モレキュラーシーブ(MS)は13×(1/6ペレット状)を使用した。ステンレス製吸着筒(70cm×φ5cm)により吸着を行った。MSの再生はMSを詰め、吸着筒をマントルヒーターで350℃に加熱し、乾燥したN₂ガスを500ml/minの流速で流しながら行った。再生は約4時間程度行った。

I. 破過の測定、再生したMSに大気を吸引し出口における二酸化炭素と水分濃度を測定した。二酸化炭素は出口で3ℓをネトラパックに採取し、Ba(OH)₂溶液にバブリングさせ二酸化炭素をBaCO₃として沈殿させた後、過剰のBa(OH)₂を塩酸で滴定し、二酸化炭素濃度を求めた。実験時における二酸化炭素濃度は387ppmであった。水分はコールフィッシュャー法により定量した。

MSの充てん密度は685 (Kg/m³)であり、平均空筒速度 $\mu = 0.121(m/sec)(15.2ℓ/min)$ で吸引した。MSに対する二酸化炭素と水分の吸着を検討するための次の実験を行った。

実験1: 水分と二酸化炭素を同時に吸着させる。実験2: 水分をシリカゲルで除いた後、二酸化炭素だけを吸着させる。

二酸化炭素の破過曲線を図1に示す。水分と二酸化炭素を同時に吸着させた場合、破過が早

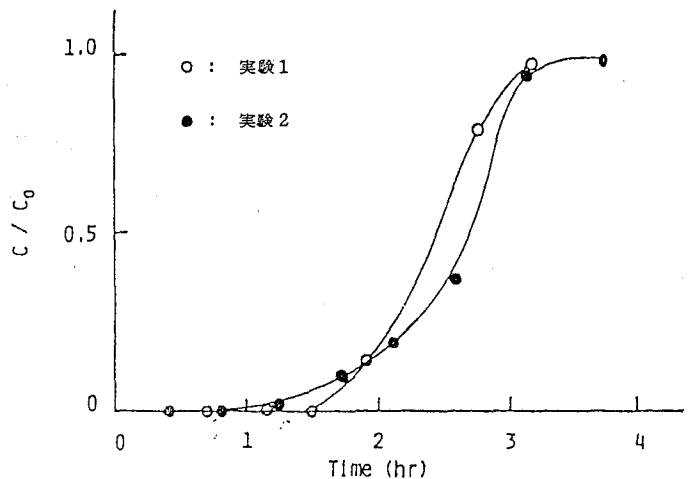


図1 破過曲線

もしまのりゆき・たかしまよしまき・まつおかのぶあき・しらいしなおすけ

く起り、吸着帯の幅も長くなつた。表1に吸着帯の長さとお着係数を示す。表に示すように吸着帯の長さは約3倍となり、お着係数も約半分となつた。実験を行つた時は、温度18℃、相対湿度62%であつたが、大気中の水分量がこれより多い場合も十分ありえる。このため二酸化炭素の捕集量は大気中の水分量で変動する。そのため、MSの前にドライアイストラップを置き水分の一部を取り除き、なるべく二酸化炭素のお着量を増やす様にした。トラップの構造、吸引速度などで除かれる水分量は変化すると思われるが、本実験では2段の前段トラップで80~85%の水分が大気中から除かれた。実験において、二酸化炭素の破過が起つた時でも、出口における水分は0%であり水分は完全にお着されていることが確認された。MSから水分と二酸化炭素の回収はお着筒を350℃に加熱し、乾燥N₂ガスを500ml/min流して行つた。最大のお着を行つた場合でも約4人で二酸化炭素、水分とも定量的に回収されることがわかつた。

脱着させた水分と二酸化炭素の回収は図2に示す装置で行つた。水分は2段のドライアイストラップで、二酸化炭素は液体チッ素で冷却したU字管で回収した。U字管は銅製で、20~40 mesh のシリカゲルを詰めている。4時間回収後、U字管中の他のガスを真空ポンプで排気後、ガラスウールを詰めた液体チッ素温度のトラップへ二酸化炭素を移す。二酸化炭素はNEN社のオキシフロアー[®]CO₂に吸収させ測定試料とする。吸収はガラス製の吸収装置で行う。この装置は二酸化炭素が吸収溶液中を小さな泡となって通過し吸収される様になつてゐる。吸収溶液100mlを装置に入れ、トラップ中の二酸化炭素を徐々に気体とし、圧力が一気圧を起えらるとバルブを開き吸収装置へ導く。二酸化炭素の発生が終つたら、N₂ガスをトラップへ入れ残つてゐる二酸化炭素を吸収溶液へすべて導びく様にした。吸収量は吸収溶液前後の重量増加より求めた。Hは回収した水40mlに乳化シンチレーター60mlを加え測定

試料とした。測定はいずれも液体シンチレーションカウンターで行う。本法は各地で大気を採取したMSを実験室へ密封して持ち帰り、処理できる利点を有している。液体シンチレーションカウンターによる測定条件、問題点等も含めて報告する。

表1 実験結果

| | 実験 1 | 実験 2 |
|-------------|-------------------|--------------------|
| お着帯の長さ (cm) | 8.5 | 26.0 |
| お着係数 | 1.1×10^4 | 0.69×10^4 |

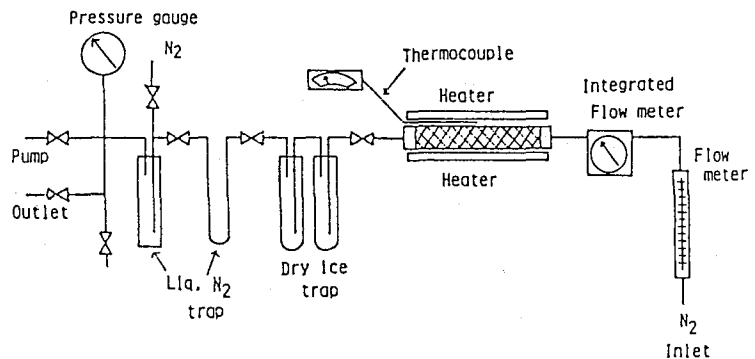


図2 二酸化炭素と水分の回収装置

- 1) 第24回放射化学討論会要旨集 P 162, P 262 (1980)
- 2) 第25回放射化学討論会要旨集 P 200 (1981)

(九大理)高島良正、中村公彦 (九大工)○岡井富雄
(九州環境管理協会)白石直典、松岡信明

我々は気体状放射性核種による線量寄与を調べる目的で、昭和54年以来大気中の放射性クリプトンの測定法の研究及び開発した測定法を用いて濃度測定を行っており、昨年の本討論会において昭和56年現在の大気中の⁸⁵Kr濃度は20~22pCi/m³であることを報告したり、今回は半減期が短かくて原子力施設からの放出量は⁸⁵Krほど多くはないが、スリーマイル島での事故のような場合には大量に環境中に放出されて、局所的な環境汚染の問題となる放射性キセノンについて捕集、分離、検出法の研究を行い、九大構内やその他の地域における大気中の⁸⁵Kr及び¹³³Xeの測定を行ったので報告する。

(実験)

キセノンの捕集は、クリプトンの場合と同様に液体窒素で冷却した活性炭100gが最適であった。キセノンの捕集効率、キセノンの大気中存在比が0.086ppmと小さいため、クリプトンの捕集効率を求めたように大気500lを吸引し、活性炭に捕集したキセノンの量から計算する方法では正確な値を求めることができないので、次に述べる方法で行った。1m³のガスホルダーに大気500lとキセノンガス5mlを入れ、この混合気体を装置で捕集、分離した後、熱伝導度検出器に接続したレコーダーにクロマトグラムを書かせ、キセノンのピーク面積から次の式で計算した。

$$\frac{B}{A(1 + 0.043/5)} \times 100(\%)$$

ここで、Aはキセノンガス5mlを熱伝導度検出器に流して求めたピーク面積、Bは上に述べた方法で求めたピーク面積である。捕集効率は99%であった。

キセノンと他の気体の分離は、カラムの充填剤として用いているモレキュラシーブや活性炭に対するキセノンの吸着能がクリプトンより大きいので、クリプトンの場合よりも高い温度で行う必要があった。カラムを-43°Cのエチレングリコール浴につけて、酸素、アルゴン、窒素、クリプトン、メタンを順次分離した後、エチレングリコールを90°Cの水に変えることによってキセノンを分離することができた。(図1参照) シンチレータへのキセノンの溶解は、トルエンに対するキセノンの溶解率がクリプトンよりも約4倍大きいので、クリプトンと同じ方法で行うことができた。

(結果)

大気500lを捕集し、⁸⁵Kr及び¹³³Xeを測定した結果を表1、表2に示す。誤差は±2%の

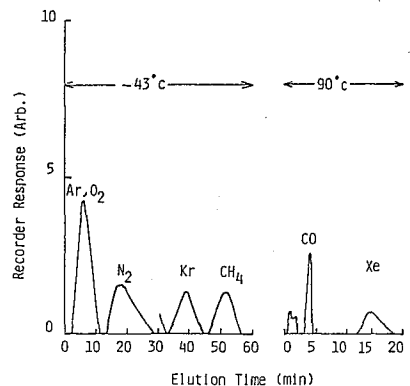


Fig.1 Elution Chromatogram

たかしまよしまさ、なかむらきみひこ、おかいとみお
しらいしなおすけ、まつおかのぶあき

値である。九州大学構内で昭和56年1月から昭和57年5月まで測定した結果から、 ^{85}Kr 濃度はほとんどのわずかに上昇しているという傾向が見られたが、顕著な季節変動は見られなかった。佐賀県の玄海発電所周辺の濃度は、九大構内と同じであった。

表2において、放射性同位元素を ^{133}Xe としたのは、原子力施設から放出され現在大気中に存在していると思われる核種は、半減期を考慮した場合、 ^{133}Xe のみと考えられるからである。測定値は液体シンチレーションカウンターで計測した値で、バックグラウンド($10.1 \pm 0.31 \text{ cpm}$)を含んだ値である。現在、装置の前段を改造し、大気5000ℓを捕集してバックグラウンドレベルの ^{133}Xe を測定しており、この結果については討論会で報告する予定である。

1) 第25回放射化学討論会要旨集

P 200 (1981)

Table 1 Concentration of ^{85}Kr in the Atmosphere

| Location | Sampling Date | Concentration of ^{85}Kr (pCi m ³) |
|-----------------------------|-----------------------|---|
| Hakozaki, Fukuoka | Jan. 30, 1981 | 20.3 ± 1.3 |
| | Feb. 19, 1981 | 21.3 ± 1.2 |
| | Mar. 17, 1981 | 21.8 ± 1.3 |
| | Apr. 3, 1981 | 20.5 ± 1.2 |
| | Jul. 14, 1981 | 21.9 ± 1.2 |
| | Aug. 7, 1981 | 21.1 ± 1.3 |
| | Nov. 4, 1981 | 22.5 ± 2.7 |
| | Dec. 9, 1981 | 21.1 ± 1.3 |
| | Jan. 19, 1982 | 21.5 ± 1.1 |
| | Feb. 18, 1981 | 23.0 ± 1.2 |
| | Feb. 19, 1982 | 21.7 ± 1.0 |
| | Mar. 24, 1982 | 22.2 ± 1.1 |
| | Mar. 30, 1982 | 21.6 ± 1.2 |
| | Apr. 14, 1982 | 21.9 ± 1.2 |
| | Apr. 30, 1982 | 22.3 ± 1.2 |
| | May 13, 1982 | 21.5 ± 1.2 |
| | Hato Cape, Saga Pref. | Nov. 30, 1980 |
| Jan. 25, 1981 | | 19.6 ± 1.4 |
| Dec. 12, 1981 | | 21.3 ± 1.3 |
| Dec. 13, 1981 | | 21.4 ± 1.4 |
| Genkai, Saga Pref. | Dec. 13, 1981 | 22.5 ± 1.4 |
| | Dec. 14, 1981 | 20.2 ± 1.2 |
| Karatsu, Saga Pref. | Dec. 14, 1981 | 21.5 ± 1.2 |
| Sakurajima, Kagoshima Pref. | Jan. 26, 1982 | 21.3 ± 1.2 |

Table 2 Activity of ^{133}Xe in the Atmosphere

| Location | Sampling Date | Activity (cpm) |
|-----------------------------|-----------------------|----------------|
| Hakozaki, Fukuoka | Dec. 9, 1981 | 10.3 ± 0.61 |
| | Jan. 19, 1982 | 10.3 ± 0.46 |
| | Jan. 21, 1982 | 10.4 ± 0.62 |
| | Feb. 18, 1982 | 10.2 ± 0.42 |
| | Feb. 19, 1982 | 10.3 ± 0.45 |
| | Mar. 24, 1982 | 10.1 ± 0.63 |
| | Mar. 30, 1982 | 10.0 ± 0.61 |
| | Apr. 14, 1982 | 10.3 ± 0.61 |
| | Apr. 30, 1982 | 10.1 ± 0.57 |
| | May 13, 1982 | 10.2 ± 0.59 |
| | Hato Cape, Saga Pref. | Dec. 12, 1981 |
| Dec. 13, 1981 | | 10.3 ± 0.59 |
| Genkai, Saga Pref. | Dec. 13, 1981 | 10.2 ± 0.41 |
| | Dec. 14, 1981 | 10.5 ± 0.42 |
| Karatsu, Saga Pref. | Dec. 14, 1981 | 10.4 ± 0.57 |
| Sakurajima, Kagoshima Pref. | Jan. 26, 1982 | 10.2 ± 0.58 |
| Minamata, Kumamoto Pref. | Jan. 26, 1982 | 10.0 ± 0.59 |
| | Background | 10.1 ± 0.31 |

(金沢大学 LLRL) 阪上正信, 松崎栄

当施設で開発、サンゴや貝化石など炭酸塩についてはほぼルーチン化したをベンゼン液シン年代測定法を、さらに木材等炭質物に適用するための研究を行い、これより得られた年代測定結果を添えて報告する。なお、調製ベンゼンの少ない場合のマイクロバイアル(全容5ml)の適用、およびLSCのBqの変動について紹介する。

I) 炭質物の燃焼・CO₂捕集: 試料をあらかじめ350℃前後で空気の流入を防ぎ十分炭化させたのち、Fig. 1 に示す装置でアルカリ洗浄した酸素気流中約500℃で燃焼した。不完全燃焼による一酸化炭素は、燃焼管と同時に加熱した酸化銅カラムを通して酸化し、出てきた気体を硫酸酸性KMnO₄溶液で洗浄した後CO₂を捕集する。この際、常法のようにCO₂をアンモニアで吸収しCaCl₂により炭酸塩とし、再びCO₂を発生させるのでは操作が面倒なので、Fig. 1に示すように過剰酸素の液化を防ぎつつ(液体窒素でn-C₃H₇OHを凝固点付近まで冷却)、CO₂をドライアイスとして直接捕集することとした。冷却用の液体窒素は500ml前後で10時間以上補給なしで連続使用できる。この方法で試薬自身や操作中のコンタミを除き、又試料からベンゼンを調製する液シン法では、イオウ酸化物等不純物の影響はその過程に除けると考えた(ガスクロで検討)。CO₂捕集後は従来のベンゼン合成装置に接続、Table Iに示す過程でベンゼンを調製した。

この炭質物燃焼・CO₂捕集によるC→CO₂の収率は、市販活性炭による2例について85.4%、82.6%であった。一般の試料ではこれよりみかけの収率は落ちるが、それは炭化処理不十分の試料量を基準とするためと思われる。CO₂→C₂H₂の収率は加熱温度を加減してLiの飛沫を防ぐこと等で、現在は常に90%以上である。C₂H₂→C₆H₆では触媒の調製と活性化が向題であり、現在V₂O₅を吸着したアルミナをいったん前記電気炉中400℃近くに酸素気流中で加熱し、さらに真空ライン中で300℃加熱活性化している。酸素中加熱処理を施すとC₂H₂の吸収速度は早まるが、その後の真空活性をあまり長くし過ぎると、かえって収率が落ちる点に注意しなければならないことを認めた。

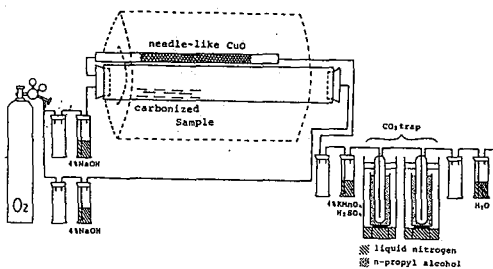


Fig.1
Combustion furnace and trapping system of CO₂ for carbonaceous samples

| | | Yield(%) | Time(hr) |
|-----|--|----------|----------|
| I | $C \xrightarrow[\Delta 400-500^\circ C]{O_2} CO_2$ | 60-90 | 3-5 |
| I' | $CaCO_3 \xrightarrow{HClO_4} CO_2$ | 97-99 | 1.5 |
| II | $2CO_2 + 10Li \xrightarrow[\Delta 750^\circ C]{} Li_2C_2 + 4Li_2O$ | 83-97 | 1.5-2.0 |
| III | $Li_2C_2 + 2H_2O \longrightarrow C_2H_2 + 2LiOH$ | 1.5-2.0 | |
| IV | $3C_2H_2 \xrightarrow[\text{Catalyst}]{\text{Vanadium}} C_6H_6$ | 71-91 | 24-35 |
| | Overall | 66-90 | 3 day |

Table I

II) 各種炭質物試料の測定結果: Fig.2 にその主なものを示し以下説明する。

i) 金沢市の歩道整備工事現場から発見された辰巳用水角形木管を、酸処理のみで測定し 280 ± 37 yr.B.P. を得た。なお、京都産業大 (C_2H_5OH 液シン法)、東北大 (C_2H_2 ガス法) によるクロスチェックも、当研究室の結果を支持した。

ii) 神戸ポートアイランド地下 22.40 m で採取されたピートを、アルカリ処理による第1および第2可溶成分、さらに不溶成分とに分け測定した。それぞれの年代は、 $15,240 \pm 250$, $15,500 \pm 330$, $15,300 \pm 350$ となり差はみられなかった。

iii) 旧能美線軌道枕木の測定では、図に示すように酸処理しか施さないで意外と低い比放射能となり、さらにアルカリ・酸処理を行うと高くなったがなお予想より低い。これは、枕木の腐食防止に用いられるコータール等 dead carbon の除去が不十分のためと思われる。

一般に炭質試料に対するアルカリ処理は、二次的に付加した有機物除去のために行われるが、ii) のように地中かなり深い場合や iii) に示すような例もある。すなわち試料に対する前処理は、個々の試料の出所や量に応じ適切に配慮しなければならないことがわかる。

iii) 昨年の夏、富山湾汗で発見された埋没林(深度等 Fig.2 参照)を、金沢大地理学教室の研究と協力して検討した。本試料については酸処理しか施さなかったが、海水準的変動からみてほぼ妥当な結果が得られた。

III) 測定条件の検討: 20ml バイアル, B-PBD のトルエン溶液による当施設のベンゼン液シン法で十分な精度で年代を算出するためには、3g 程度ベンゼンを調整するのが望ましいが、試料が少なく 1g しか調整できなかった場合、シンチレーター溶液を約 19ml 加えることになるが、マイクロバイアル(全容 5ml)なら 4ml で済む。そこで当施設でもその適用を検討した (Fig. 3)。図中にバイアルの様子も示したが、この測定で BG 2.40 cpm, 検出効率 は 1~2g の測定で 54% 程度を得、その FM 値を通常の 20ml バイアル測定と比較するとかえってよいことがわかり、今後実際の測定などでさらに検討することにした。

以上に加え、当研究施設使用の液体シンチレーションカウンタ (Aloka LSC-LB1 20ml バイアル専用改造型) での測定チャンネルの設定とその BG 変動の様子などについて、当日発表予定である。

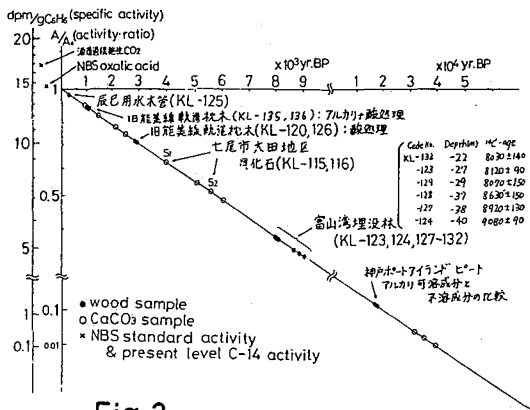


Fig. 2

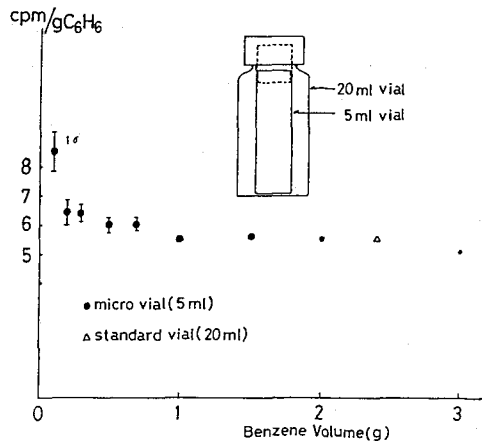


Fig. 3

(日本分析セ) ○森本隆夫 室井隆彦 佐藤兼章 坂東昭次

(緒言)

放射性コバルトは原子力施設等から排出される放射性核種のうち最も代表的な指標核種であり、一般にはゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析法が多く行われている。しかし、環境試料ではいわゆるフォールアウトに基づく存在起因も考えられ、低レベルまでの分析が必要とされている。環境試料、特に海底土中のコバルト-60の放射化学分析には主としてイオン交換分離-低バックグラウンドカウンターによる測定が行われている。しかし、イオン交換分離法はカラムのコンディショニングや流速の調整など分析操作に時間を要すること、またコバルトの溶離時に細心の注意でコバルトを取り出さねばならぬことなど煩雑である。そこで、できるだけ短い時間でしかも安全に使用できる分離法が要望されている。我々は海産生物中の放射性コバルトの迅速分析法として1-ニトロソ-2-ナフトール分離-液体シンチレーションカウンター測定法について、既に報告したが、今回はこの方法を海底土試料に応用し、液体シンチレーションカウンターで測定できるようなコバルトの分離方法について検討したので報告する。

(分析方法)

分析方法の概要を図1に示す。試料は磁製皿に秤り取り、電気炉で650°C 7時間加熱し有機物の分解を行った。海底土の8N塩酸抽出液には多量の鉄が存在するため、10% TBPによってこれを抽出除去した。水相の酸濃度を調整後、10% TiOA-ベンゼンでコバルトを抽出し、0.1N塩酸で逆抽出を行った。コバルトの1-ニトロソ-2-ナフトール錯体を生成させベンゼンで抽出した。このベンゼン相の洗浄のために、塩酸、水酸化ナトリウム溶液、水酸化ナトリウム-塩酸ヒドロキシルアミン溶液を順に使用した。ベンゼン相を蒸発乾固し残渣を過塩素酸と硝酸で分解後、5% TiOA-トルエンでコバルトを抽出した。この有機相をバイアルに移し、POP, DMP, OPOP-トルエンを加え液体シンチレーションカウンターで放射能を測定した。

(結果と考察)

1. 海底土試料の加熱処理

海底土に含まれる有機物のため酸抽出や化学分離に影響することがある。この有機物を分解する方法

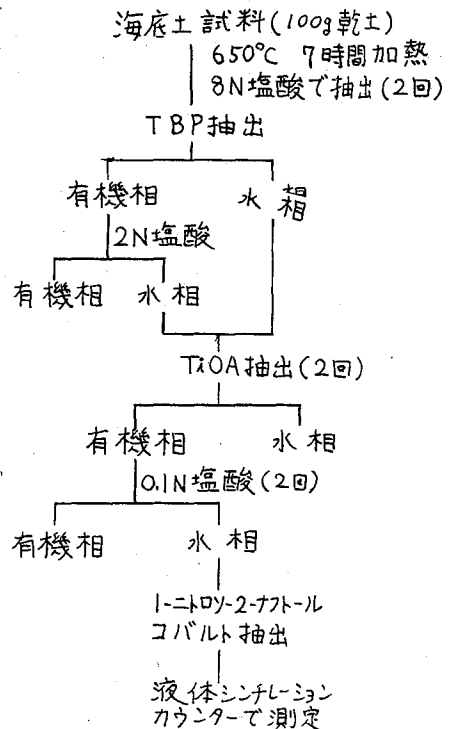


図1 分析方法の概要

もりもとたかお・むろいたかひこ・さとうかねあき・ばんどうしょうじ

として海底土を加熱することがある。しかし、高温で加熱するとコバルトが揮散することが考えられる。そこで海底土を200~900℃ 5~7時間加熱後、塩酸で抽出しコバルトの抽出量の変化を調べた。700℃まではコバルトの抽出量に大きな変化はなく、800~900℃では減少した。このことから650℃で加熱処理を行うことにした。

2. 1-ニトロソ-2-ナフトール

コバルト抽出における鉄の影響

海底土の塩酸抽出液には多量の鉄が存在する。この塩酸抽出液から、直接コバルトを1-ニトロソ-2-ナフトール錯体で抽出分離する方法を検討するために、鉄が共存する場合のコバルト回収率の変化を調べた。結果を図2

に示す。コバルト 30 μ g, 鉄 10~1000mg が共存すると回収率は100~60%まで低下する。これは鉄が多量に存在するためコバルトの1-ニトロソ-2-ナフトール錯体の生成を妨害していると思われる。そこで鉄を100% TBPで抽出除去後、コバルトを1-ニトロソ-2-ナフトール錯体で抽出し回収率を求めた。鉄が50~1000mg 共存してもほぼ100%の回収率を得た。

3. 化学収率

TBP抽出後のTiO₂A抽出時のコバルト回収率は0.1N塩酸で2回逆抽出することによってほぼ100%であった。TBP抽出, TiO₂A抽出を通じてのコバルトの回収率を求めるために、鉄1g, コバルト50 μ gを含む8N塩酸溶液500mlを調製した。これより50mlを分取しTBP抽出後コバルトを1-ニトロソ-2-ナフトール吸光度法で定量し、また残る450mlをTBP抽出, TiO₂A抽出後コバルトを定量した。両者ともほぼ100%で満足できるものであった。このことから海底土の塩酸抽出液を一部分取しTBP抽出後安定コバルトを定量し、またその残りの塩酸抽出液をTBP抽出, TiO₂A抽出後安定コバルトを定量できるため、これらの定量値からこの分離操作における収率を求めることが可能である。

4. 海底土中コバルト-60の定量

検討した分析法に従って海底土の処理を行った。その1例として泥質海底土試料約100gを秤り取り、分析した結果は11 \pm 2.4 pCi/kg 乾土であった。イオン交換分離-低バックグラウンドカウンターで測定した結果は7.3 \pm 1.9 pCi/kg 乾土であった。前者がやや高い値であるが測定誤差を考慮すると両者はほぼ一致していると考えられる。本分析の所要時間は試料の塩酸抽出後測定まで約5日であった。

D佐藤兼章ほか, *Radiosotopes*, 28, 285 (1979)

LSC LBC GC の比較

BG 7 cpm

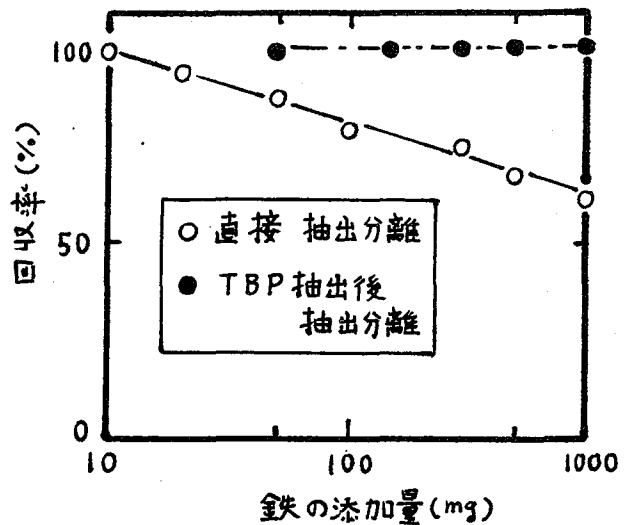
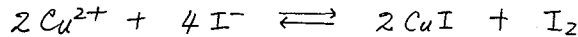


図2 1-ニトロソ-2-ナフトール
コバルト抽出における鉄の影響
コバルト 30 μ g

放医研 ○平野茂樹 小柳 卓

緒言. 放射性ヨウ素は海水中では海水の酸化還元電位, 或いは生物活動の影響を受けて I^- および IO_3^- イオンとして存在する事が知られており, また安定ヨウ素も I^- および IO_3^- イオンの形で海水中に準平衡状態で存在する事が知られている。ヨウ素は人間にとって必須元素であり, その生物体内における代謝速度は大きく, 従って, 長寿命の¹²⁹Iのみならず短寿命の¹³¹Iについても海産生物を経由する放射性ヨウ素の人体に対する放射線被曝を考慮する必要があるが, 海産生物, 特に海産魚による放射性ヨウ素の濃縮は I^- と IO_3^- の間に著しい差があり, 同時に共存する安定ヨウ素の対応する化学形の濃度が放射性ヨウ素の海産魚による濃縮に影響を与える事が実験的にわかって来た。従って, 海産魚による放射性ヨウ素の濃縮係数を予測するために海水中に放出された放射性ヨウ素の化学形のみならず, 共存する天然の安定ヨウ素についても各々の化学形の濃度を知る必要があるが, 従来の定量法は煩雑であり海水中の安定ヨウ素の濃度を常時モニタリングする方法としては不适当である。これら問題を考慮して我々は海水中の安定ヨウ素を化学種毎に簡易迅速に定量する方法を開発すべく実験を続けて来たが同位体稀釈効果を利用する溶媒抽出法により良い結果が得られたので報告する。

実験方法. I^- と IO_3^- イオンを分別定量するにはいずれか一方と特異的に反応する化学反応を見つけたら良いのであるが, この目的に利用できるような化学反応について検討を加えた結果, Cu^{2+} イオンによる I^- イオンの I_2 への酸化反応が有効である事がわかり, この反応で生成した I_2 をトルエンに抽出定量する事が可能となった。 I^- イオンを酸化する反応は次式で示される, すなわち,



この反応で $Cu^{2+} \rightleftharpoons Cu^+$ のポテンシャルが $I_2 \rightleftharpoons I^-$ のそれより低いにも拘らず右側の反応が進むのは生成した CuI が強い結合をなす為の結果として Cu^{2+} イオンの酸化能が高められる事によるものと考えられる。この反応で生成した I_2 をトルエンに抽出する事により安定ヨウ素の検出はできるが定量はできない。 I^- イオンの定量には¹²⁹I-と安定 I^- イオンの同位体稀釈効果を利用した, すなわち, 通常の濃度における化学反応速度は反応する物質の濃度に比例するが, 極低濃度ではこの法則が成立しない濃度範囲があり, 化学反応の種類, 性質によってその濃度範囲は異なると思われるが, 化学反応の速度よりも同位体稀釈効果の方が顕著に現れる濃度範囲がある。 I^- イオンを Cu^{2+} イオンで I_2 に酸化する反応では I^- イオンの濃度が $0 \sim 50 \mu g I^- / l$ 付近まで同位体稀釈効果が優勢である事が実験的にわかった。通常の天然海水の全ヨウ素濃度は $\sim 60 \mu g I^- / l$ 程度であり, その内の数分の1が I^- イオンとして存在していると言われているのでこの同位体稀釈効果を利用して海水中の I^- イオンだけを定量する事ができる。全ヨウ素の定量は IO_3^- イオンをチオ硫酸ナトリウムの水溶液を加えて I^- イオンに還元し, 未反応のチオ硫酸ナトリウム

ひらの しげき, こやなぎ たく.

を硝酸で分解したうち、 m -プロピルアルコールを加えて I^- イオンと反応させる事により m -プロピルヨウ素を作り、 Cu^{2+} イオンを用いた反応の場合と同様にトルエンに抽出する。ここでも同位体希釈効果も利用することができた。

実験操作. 実験に用いたヨウ素のトレーサーは ^{125}I の NaI 水溶液で購入し、一部を Br_2 で IO_3^- イオンに酸化した。その他、試薬および溶媒はすべて特級品をそのまま使用した。また、人工海水としてはフレミングの処方を用いて作った。検量線を得るためにヨウ素フリーの人工海水に KI 水溶液を加えて $0 \sim 60 \mu g I/l$ の種々の濃度の海水を作り、これに一定量の $^{125}I^-$ をトレーサーとして添加してテスト溶液とした。この人工海水 $10 ml$ をピペットで $50 ml$ の分液ロートに取り、別に作ってある m -プロピルアルコール/トルエン溶液(1:10)を $10 ml$ 加え、更に $1M-CuSO_4$ 水溶液を $1 ml$ 加えた後、30分間振とうする。二相が分離した後、両相から $1 ml$ を測定用試験管に取って ^{125}I のガンマ線を計測してその計数値からヨウ素の分配比を求める。次に全ヨウ素定量用の検量線を得るために、 KI および KIO_3 水溶液を用いて各種々の濃度の I^- 或いは IO_3^- イオンを含む人工海水を作り、各々の化学形に調整した ^{125}I トレーサー添加する。この人工海水 $10 ml$ を $50 ml$ の分液ロートに取り、 $0.01M-Na_2S_2O_3$ を1滴加えて時々振とうしながら30分間還元反応を進行させる。未反応の $Na_2S_2O_3$ を分解する為に $7N-HNO_3$ を $1 ml$ 添加し、時々振とうしながら30分間放置した後、 m -プロピルアルコール/トルエン溶液を加えて30分間振とうして I^- の定量の場合と同じように分配比を求める。

実験結果および考察. 図1に I^- イオンの検量線を示す。海水の PH 範囲では Cu^{2+} イオンは I^- イオンとだけ反応して I_2 を発生させるので IO_3^- イオンが共存しても I^- イオン濃度にのみ依存する分配比曲線が得られる。但し、この場合には同位体希釈効果により比放射能の高いヨウ素が見かけ上分配比が大きくなるので負の相関を持った分配比-濃度曲線が得られる。この曲線を検量線として用い、未知試料について同じ操作で得られた分配比から I^- イオンの濃度を知らることができる。図1の曲線から比放射能が高くなる程、すなわち、 I^- イオンの濃度が低くなる程、感度が高くなる事がわかるが、 I^- イオンの低い濃度について精度の良い検量線を作成する事は試薬や実験操作中に混入すると思われるヨウ素のために難しい。しかしながら筆者らが茨城県の沿岸で採水した天然海水では I^- イオンの濃度が約 $10 \mu g I/l$ 程度であるのでこの濃度範囲についてはこの定量法が感度および精度共に十分である。

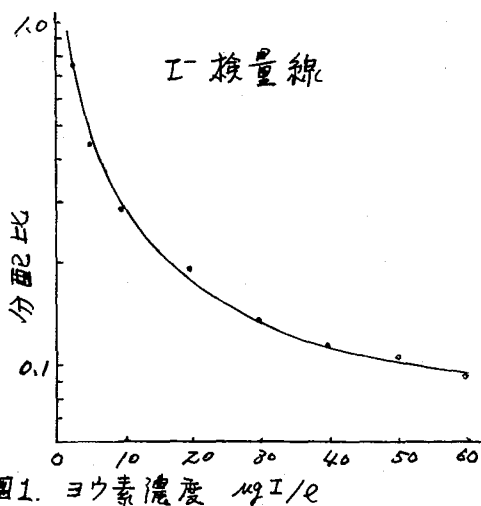


図1. ヨウ素濃度 $\mu g I/l$

武蔵工大・原研 °木夕照幸 鈴木章悟 平井昭司

1. 緒言

LEPS (Low Energy Photon Spectrometry) を用いた中性子放射化分析は、高純度 Ge 半導体検出器が 1970 年代によって新しく開発された為研究例が少く、まだまだ検討すべき内容が多い。加えて、測定の際の自己吸収の補正や X 線スペクトルの複雑さの故に Ge(Li) 半導体検出器による X 線スペクトロメトリーほど利用されて来なかった¹⁾。

そこで我々は、基礎研究として LEPS と Ge(Li) 検出器における分析感度の比較・検討を、標準試料について行った。

2. 実験

標準試料は、次の 2 通りの方法で作製した。①一定量の元素を酸または蒸留水に溶かし、洗浄済みの濾紙に分取する方法と、②元素の酸化物等を数 $\mu\text{g} \sim 150 \mu\text{g}$ 程度ミクロ天秤で精秤し、濾紙にスワッチャーで貼りつける方法である。

中性子照射は全て武蔵工大炉を使用し、短寿命核種の分析には気送管(熱中性子束: $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で 30 秒または 2 分、中・長寿命核種の分析には中央実験管(同: $3.2 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)で 5 時間行った。

また、光子の測定には、 $25.2 \text{ mm} \phi \times 15 \text{ mm}$ (厚さ) の高純度 Ge 検出器と 4096 波高分析器 (CANBERRA MODEL 4203) を用いた。

3. 結果

各核種について得られた計数値は半減期及び不感時間の補正式により照射終了時刻での計数率に補正された。結果の一部を Table 1 (短寿命核種) 及び Table 2 (中・長寿命核種) に示す。分析に使用可能な X 線は殆ど K X 線で、 K_{α} とあるのは K_{α_1} と K_{α_2} の K_{β} とあるのは K_{β_1} と K_{β_2} の X 線ピーク面積の和から分析感度 ($\text{cps} / \mu\text{g}$) を求めたことを意味する。その際の X 線エネルギーは各々 K_{α_1} または K_{α_2} の値である。

Table には、Ge(Li) 検出器による分析感度と同程度かまたはそれ以上の感度を有すると期待できる元素の一部を示した。例えば U, Th は低エネルギーの X 線を利用すれば気送管で照射し迅速に分析できることが分かり、有益である。

X 線を分析に利用する上で考慮すべき点のひとつは、異なる核種から同じ X 線またはエネルギーの極めて近い X 線を放出したり、同じ核種から 2 通りの崩壊形式を経てエネルギーの近い異なる X 線を放出する場合である。その際には、崩壊曲線を挿入経時点における X 線強度の比を求めた。それらの元素は、例えば短寿命核種では Se, Br, Te, Sn, Hf, Sr 等である。X 線のエネルギーは原子番号とともにわずかに上昇していくだけなので、解析の複雑さはあるがマトリックスによらず X 線スペクトロメトリーで検出可能な核種を検出し、分析に利用可能であろう。

ほんだてるゆき すがましようご ひらいしょうじ

T a b l e 1

| Element | Isotope | Decay Mode | Half Life | X-ray r-ray | Energy (keV) | Irr. Time | Sensitivity (cps/ μg +error%) | Distance (mm) |
|---------|---------------------------|------------|-----------|----------------|--------------|-----------|--|---------------|
| Ag | ^{108}Ag | EC | 2.41m | PdKA | 21.2 | 30s | 7.53(+6.2) | 30 |
| Co | $^{60\text{m}}\text{Co}$ | IT | 10.48m | CoKA, CoKB) | 6.9 7.7 | 30s | 24.2(+0.50) | 50 |
| Cs | $^{134\text{m}}\text{Cs}$ | IT | 2.89hr | CsKA | 31.0 | 2m | 1.51(+1.0) | 30 |
| Dy | $^{165\text{m}}\text{Dy}$ | IT | 1.26m | DyKA | 46.0 | 30s | 757(+0.80) | 30 |
| Eu | $^{152\text{m}}\text{Eu}$ | EC | 9.30hr | SmKA | 40.1 | 30s | 9.48(+0.57) | 50 |
| I | ^{128}I | EC | 25.0m | TeKA | 27.5 | 30s | 0.576(+1.7) | 50 |
| Sb | $^{122\text{m}}\text{Sb}$ | IT | 4.20m | SbKA | 26.4 | 2m | 1.83(+0.97) | 50 |
| Th | ^{233}Th | B | 22.4m | r | 86.6 | 2m | 13.8(+2.6) | 10 |
| U | ^{239}U | B | 23.54m | r | 74.7 | 2m | 63.7(+0.68) | 30 |

T a b l e 2

| | | | | | | | | |
|----|---------------------------|----|--------|--------------|--------------|-----|--------------|----|
| Au | ^{198}Au | B | 2.70d | HgKA1 | 70.8 | 5hr | 106(+3.4) | 10 |
| Ba | ^{131}Ba | EC | 11.70d | CsKA | 31.0 | 5hr | 0.462(+1.6) | 10 |
| | ^{131}Cs | EC | 11.70d | XeKA | 29.8 | | | |
| Eu | ^{152}Eu | EC | 12.4yr | SmKA | 40.1 | 5hr | 12.4(+0.51) | 30 |
| Se | ^{75}Se | EC | 120.0d | AsKA, KB) | 10.5 11.7 | 5hr | 0.972(+1.1) | 10 |
| Sr | ^{85}Sr | EC | 65.2d | RbKA | 13.4 | 5hr | 0.0120(+6.1) | 10 |
| Tb | ^{160}Tb | B | 72.3d | DyKA | 46.0 | 5hr | 5.30(+0.95) | 30 |
| Te | $^{121\text{m}}\text{Te}$ | IT | 150.0d | TeKA | 27.5 | 5hr | 0.180(+0.52) | 10 |
| Th | ^{233}Pa | B | 27.0d | UKA1 | 98.4 | 5hr | 5.82(+1.0) | 10 |
| U | ^{239}Np | B | 2.35d | PuKA1 | 103.8 | 5hr | 82.3(+1.1) | 20 |
| | | | | r | 106.1 | | 102(+0.91) | |
| Zn | ^{65}Zn | EC | 244.0d | CuKA KB | 8.0 8.9 | 5hr | 0.165(+1.0) | 10 |

1) S.HABIB, M.J.MINSKI J. Radioanal. Chem. 62 (1-2) 307 (1981)

ほんだてるゆま すずましようご ひら、いしょうじ

(京大原子炉) °林 茂樹, 小山睦夫

序

環境放射能や核反応生成物その他で、 α 線の測定を行う際、 γ 線の場合と異なり、荷電粒子の測定にはエネルギー測定の分解能が悪い。 α 線の測定には現在のところ、半導体検出器である Surface Barrier Silicon あるいは Pure Germanium がよく用いられるが、そのエネルギー分解能は、せいぜい ~ 15 keV (at 5.48 MeV) 程である。従って、特にアルファスペクトル測定にはピークの弁別が不可能な二重・三重... 多重のピークによくお目にかかる。そういった重なったピークの解析方法として、これまでは主として多重ガウス関数による fitting によってピークの分離を行って来ている。その際用いられる方法は、非線形最小二乗法なる手法で、あるパラメータの初期値が不備係数を求め iteration の方法で収束するまで計算を行うといった非常に計算に時間がかかり、場合によってはパラメータが多くなり発散してしまうという事もよく起こりうる。ここでは、こういった iteration による方法ではなく、線形化された差分方程式を使い、一義的にガウス関数の分離を行おうとするものである。⁽¹⁾

方法

一般に、 n 多重ピークをチャンネル x のガウス関数の和

$$y(x) = \sum_{k=1}^n A_k \cdot \exp\left[-\frac{(x-p_k)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (1)$$

で表わすと、 $y(x)$ は、

$$y(x+n) + \sum_{k=1}^n (-1)^k \alpha_k \beta_k \cdot y(x+n-k) = 0 \quad (2)$$

で表わされる差分方程式を満足する。ここで α_k, β_k は

$$\alpha_k = \sum_{j=1}^n \prod_{j=i}^n \exp\left(\frac{p_j}{\sigma^2}\right) \quad (3)$$

$$\beta_k = \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2} [2kx + k(2n-k)]\right] \quad (4)$$

である。

ここで、 N を多重ピーク領域のデータポイント数、 Y_k を x_k チャンネルにおけるカウント数とすると、ガウス関数のパラメータ A_k, P_k は、次式を最小にするという条件で決定される。すなわち、

$$\sum_{j=1}^{N-n} \left[Y_{j+n} + \sum_{k=1}^n (-1)^k \alpha_k \beta_k \cdot Y_{j+n-k} \right]^2 = \min. \quad (5)$$

はやし しげき, こやま むつお

$$\begin{bmatrix} A_{11} & A_{12} & \dots & A_{1n} \\ A_{21} & A_{22} & \dots & A_{2n} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ A_{n1} & A_{n2} & \dots & A_{nn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} +\alpha_1 \\ -\alpha_2 \\ \vdots \\ (-1)^{n-1} \alpha_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_1 \\ B_2 \\ \vdots \\ B_n \end{bmatrix} \quad \begin{aligned} A_{ij} &= \sum_{k=1}^{N-n} \beta_i \beta_j \cdot Y_{k+n-i} Y_{k+n-j} \\ B_i &= \sum_{k=1}^{N-n} \beta_i \cdot Y_{k+n} Y_{k+n-i} \end{aligned} \quad (6)$$

より α_k の値を求め、その値を係数とする n 次代数方程式

$$U^n - \alpha_1 U^{n-1} + \alpha_2 U^{n-2} - \dots + (-1)^n \alpha_n = 0 \quad (7)$$

より、その代数解 $\{U_k\}$ を求めることによりピークの個々の位置パラメーター P_k が決定される。すなわち

$$P_k = \sigma^2 \cdot \ln(U_k) \quad (8)$$

(8) の値が (5) 式に代入することにより、ピークの高さのパラメーター A_k が決定でき

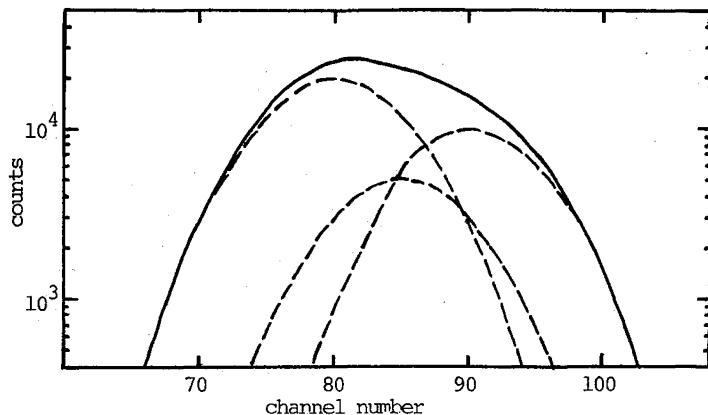
$$\begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & \dots & C_{1n} \\ C_{21} & C_{22} & \dots & C_{2n} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ C_{n1} & C_{n2} & \dots & C_{nn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ \vdots \\ A_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ \vdots \\ D_n \end{bmatrix} \quad \begin{aligned} C_{ij} &= \sum_{k=1}^N \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2}[(x_k - p_i)^2 + (x_k - p_j)^2]\right] \\ D_i &= \sum_{k=1}^N Y_k \cdot \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2}(x_k - p_i)^2\right] \end{aligned} \quad (9)$$

この方法では、すべて代数方程式 (6) (7) (9) 式を解くという操作だけで終り、答が一義的に決まってしまう。iteration による収束という非線形最小二乗法より計算時間が非常に少なくて済む。又初期値を与えなくてもよい利点もあるが、一つ一つのピークの中 (σ) はすべて同じでなければならぬというのが難点である。しかし多重ピークの中で一つ一つのピークの中が一定と仮定しても、それほど大きな error にはならない。

結果

計算機で実際に n 個のピークの重ね合わせを作り、 n の値を変化させていって、上記の計算を実行し、(7) 式の正の実数解より、元のパラメーター A_k, P_k を求めると、有効数字 8 ケタの範囲で完全に一致する。 $n=3$ の例を下面に示す。

| | |
|-------|-------|
| P_1 | 80 |
| A_1 | 20000 |
| P_2 | 85 |
| A_2 | 5000 |
| P_3 | 90 |
| A_3 | 10000 |



表では、実際のアルファスペクトルの解析結果を報告し、併せて非線形 iteration 法との比較検討を行う。

(1) T. Mukoyama, Nucl. Instrum. & Methods 180 (1981) 553.